



Transport des excitations (phonons et quasiparticules) dans l'étain supraconducteur

Bernard Pannetier

► To cite this version:

Bernard Pannetier. Transport des excitations (phonons et quasiparticules) dans l'étain supraconducteur. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1980. Français. NNT: . tel-00199920

HAL Id: tel-00199920

<https://theses.hal.science/tel-00199920>

Submitted on 20 Dec 2007

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT D'ETAT

ès Sciences Physiques

présentée

A L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

- Paris 6 -

par Mr PANNETIER Bernard

Pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : TRANSPORT DES EXCITATIONS (PHONONS ET QUASIPARTICULES)
DANS L'ETAIN SUPRACONDUCTEUR

Soutenue le 30 juin 1980 devant le jury composé de :

MM. BOK J. Président

GILABERT A.	} Examineurs
GRILL W.	
MANEVAL J.P.	
MAYNARD R.	
SIMON Y.	

Ce travail a été accompli dans le Groupe de Physique des Solides de l'Ecole Normale Supérieure. J'en suis reconnaissant à la Direction, à la Sous-Direction ainsi qu'à M. le Professeur Bok, mon Directeur de thèse.

En tout premier lieu, je tiens à exprimer ma gratitude à J.P. Maneval qui a guidé mon activité de recherche au laboratoire depuis 1972. Son dynamisme, sa clairvoyance et son souci permanent de la perfection m'ont beaucoup apporté. Il m'a constamment épaulé notamment lors de la rédaction et sans aucun doute une part importante dans l'aboutissement de ce travail lui revient.

Je n'oublie pas les autres membres de l'équipe "Impulsions de chaleur". Cette thèse est avant tout une oeuvre collective: D.Huet y a largement contribué, depuis l'installation du cryostat à ^3He jusqu'au dépouillement de certaines expériences. J'ai beaucoup bénéficié de ses grandes qualités d'ingénieur et de physicien. C'est avec F.R. Ladan que furent réalisées les premières expériences d'impulsions de chaleur dans le niobium, point de départ de cette étude et avec H. Guyot que furent interprétés les résultats dans Sn normal. P.Letur a fabriqué nombre de pièces mécaniques et d'appareillages électroniques. Je citerai également les visiteurs étrangers J. Buechner, Phan Hồng Khôi et surtout N. Lockerie qui tous ont eu une part active dans ce travail.

MM. les Professeurs A. Gilabert, W. Grill, R. Maynard et Y. Simon m'ont fait l'honneur de participer au jury de cette thèse. Je tiens à leur exprimer ici ma gratitude.

Je remercie toutes les personnes avec qui j'ai eu des discussions enrichissantes, en particulier B. Castaing, N. Perrin, A. Libchaber et B. Lambert.

Il m'est agréable de remercier l'ensemble des Services Généraux du laboratoire de l'E.N.S. grâce auxquels le travail expérimental a pu s'effectuer. Je mentionnerai les ingénieurs du bureau d'étude et les techniciens de l'atelier qui ont construit le cryostat à ^3He , ainsi que J.C. Maréchal pour l'aide précieuse qu'il m'a apportée en matière de cryogénie.

Cette thèse a pu se dérouler dans des conditions exceptionnelles grâce aux moyens importants dont bénéficie le laboratoire. Je remercie les organismes, CNRS et Universités, qui en ont assuré le financement.

La réalisation matérielle de ce mémoire revient à M.C. Vivion pour la frappe, Madame Moissenet pour les dessins et Mr Auquier pour les photos. Madame Audoin en a assuré le tirage. Merci aussi à ces personnes pour l'aide efficace qu'elles m'ont apportée.

Enfin, ces remerciements seraient incomplets s'ils n'accordaient une place de choix à mes parents et amis et surtout à ma femme Françoise qui m'ont supporté pendant les moments difficiles de la rédaction et m'ont témoigné jour après jour un soutien moral jamais démenti.

INTRODUCTION

A l'origine de notre orientation vers les supraconducteurs, il y avait une longue expérience des impulsions de chaleur balistiques dans les solides non métalliques. Ceux-ci se prêtent à de multiples observations : d'acoustique purement, d'anharmonicité (second son), de filtrage de phonons par les électrons dans un semiconducteur etc... Mais aucun système ne possède une sensibilité comparable à celle de l'état supraconducteur où l'on déplace aisément l'équilibre recombinaison-dissociation, où l'on peut éventuellement établir des courants diamagnétiques, ou un réseau de vortex (type II), en restant dans un domaine spectral idéalement adapté aux phonons thermiques.

C'était aussi le moment où se développait, à côté de la théorie BCS qui couvrait parfaitement la physique du supraconducteur à l'équilibre ou faiblement perturbé, un intérêt nouveau pour les états très éloignés de l'équilibre thermodynamique. Situations que l'on atteint facilement sur des couches minces évaporées soumises à une irradiation quelconque ou à un courant électrique. Parmi tous les effets conjecturés ou effectivement observés, ne mentionnons que l'élévation de T_c sous irradiation microonde, ou l'instabilité vers un état spatialement inhomogène créé par une impulsion laser. De tels effets, gouvernés par la cinétique de recombinaison et la diffusivité des quasiparticules, sont très dépendants de la géométrie en film (c'est en particulier l'interface avec le substrat qui limite en général le taux d'évasion des phonons à 2Δ).

Dans le supraconducteur en volume, ce sont non plus les collisions sur les parois qui règlent les différentes durées de vie des phonons et des quasiparticules, mais les seules interactions électron-phonon, au moins dans la limite des puretés parfaites. C'est sur cette assurance que nous avons entrepris notre étude de niobium, matériau d'un grand intérêt, mais qui pose aussi

de redoutables problèmes métallurgiques. C'est finalement l'étain qui nous a paru le plus approprié, tandis que, vers la même époque, un groupe de Bell Telephone étudiait le plomb et obtenait d'ailleurs des résultats qualitativement différents des nôtres.

Le projet de ce travail était de suivre l'évolution spatio-temporelle d'une population de phonons et de quasiparticules créée soit par une impulsion laser, soit par une impulsion de chaleur. La température est un moyen d'introduire une friction contrôlée, principalement sur les phonons (comme nous le verrons, l'usage à température variable d'un détecteur jonction tunnel requiert de sérieuses précautions de calibration).

Le temps de vol des quasiparticules est fonction a priori de leur niveau d'excitation, et c'est une mesure de leur relation de dispersion. Cette recherche a quelque similitude avec celle, plus facilement accessible, des vitesses de rotons dans l'hélium quatre. Mais, dans le cas du supraconducteur, il est clair d'emblée que plusieurs facteurs comme le couplage aux phonons de recombinaison et d'autres purement métrologiques (vitesses très élevées) limitent une approche aussi directe.

Quoi qu'il en soit, le transport thermique dans un supraconducteur est d'une grande richesse, dont nous espérons faire la preuve dans cette thèse, et c'en sont les aspects les moins prévisibles (régimes de forte excitation) qui devaient se révéler les plus attrayants.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>CHAPITRE I : COUPLAGE DES EXCITATIONS THERMIQUES DANS UN SUPRACONDUCTEUR</u>	1
A. Etat de base	1
B. Probabilités de transitions électron-phonon et effets de cohérence	4
C. Evolution des distributions sous l'effet de collisions e1-ph	9
D. Temps caractéristiques du système	13
1° Recombinaison des quasiparticules	14
2° Diffusion inélastique des quasiparticules	14
3° Absorption des phonons par les quasiparticules thermiques.	15
4° Absorption des phonons par dissociation de paires	15
5° Autres temps caractéristiques	16
E. Propriétés du système faiblement couplé	20
1° Système hors d'équilibre chimique mais en équilibre thermique	21
2° Système décrit par une température effective T^*	22
3° Faible couplage avec le thermostat. Supraconducteurs massifs.	24
F. Méthodes d'excitation	25
1° Phonons thermiques	25
2° Photoexcitation	25
3° Autres méthodes	27
G. Conductivité thermique et impulsions de chaleur	30

<u>CHAPITRE II : TECHNIQUES EXPERIMENTALES</u>	34
A. Echantillons	35
B. Couches minces	36
C. Montage expérimental	41
1° Cryogénie	41
2° Fibres optiques	43
3° Porte-échantillon et dispositif de mesure	44
<u>CHAPITRE III : LES PHONONS BALISTIQUES</u>	46
A. Mesure des durées de vie des phonons dans Sn supraconducteur (article en anglais)	
I. Introduction	48
II. Techniques expérimentales	53
III. Phonons sans interaction	55
IV. Fenêtre de propagation libre : limite à 2Δ	58
V. Calibration de la jonction tunnel d'Aluminium et mesures des libres parcours	62
VI. Discussion des résultats	65
B. Compléments	71
<u>CHAPITRE IV : PROPAGATION DES QUASIPARTICULES EN INTERACTION AVEC LES PHONONS</u>	
A. Equations de transport	
1. Equations de la chaleur couplées.	72
2. Equations de Boltzmann couplées	77
a) Mode quasiparticules + phonons 2Δ (mode mixte)	78
b) Phonons de basse fréquence	84

B. Résultats expérimentaux

1. Dispositif expérimental	86
2. Observation des divers modes de propagation	87
3. Discussion	
a) Découplage des quasiparticules et des phonons de basse fréquence. Comparaison avec Pb	89
b) Dépendance des temps de transit sur les longueurs de propagation. Etat supraconducteur, état normal	92
c) Pic additionnel	94
d) Extinction du mode mixte à basse température	95
e) Températures intermédiaires, trainée de phonons	96

CHAPITRE V : FORTES EXCITATIONS

A. Création de quasiparticules par un paquet de phonons. Compa- raison avec la photoexcitation	100
B. Domaine de gap réduit	106

<u>CONCLUSION</u>	112
-------------------	-----

<u>APPENDICE: Le Niobium</u>	113
------------------------------	-----

<u>REFERENCE</u>	118
------------------	-----

CHAPITRE I

COUPLAGE DES EXCITATIONS THERMIQUES DANS UN SUPRACONDUCTEUR

A. ETAT DE BASE SUPRACONDUCTEUR

La supraconductivité des métaux à basse température est un phénomène très bien expliqué du point de vue microscopique par la théorie de B.C.S. (Bardeen, Cooper et Schrieffer, 1957). C'est un effet extrêmement fin puisque la transition n'intéresse qu'une petite fraction ($\sim 10^{-3}$) des électrons de conduction, l'énergie n'étant modifiée que de $k_B T_C \sim 10^{-3}$ eV par électron supraconducteur (k_B constante de Boltzmann et T_C température de transition supraconductrice). Cette transition a peu d'effet sur les propriétés élastiques du réseau, les effets importants se manifestant principalement sur le spectre d'excitation électronique et sur les transitions électroniques.

L'interaction responsable de la transition est une attraction effective entre électrons provoquée par l'échange de phonons virtuels. Dans la théorie de B.C.S., le potentiel attractif est supposé constant pour tous les électrons appartenant à une bande de largeur égale à l'énergie de Debye Ω_D autour du niveau de Fermi et nul partout ailleurs. Cette approximation n'explique pas les effets de couplage fort (Parks, 1969) ou les effets d'anisotropie, mais décrit de façon très satisfaisante les propriétés fondamentales.

L'état de base est constitué de "paires de Cooper", états liés de type s d'électrons $\vec{k}\uparrow$ et $-\vec{k}\downarrow$ de moments et de spins opposés. Dans un gaz de Fermi sans interaction (métal normal à 0K) la probabilité d'occupation v_k^2 de ces états est 1 au-dessous du niveau de Fermi et 0 au-dessus. En présence du potentiel attractif, le système d'électrons diminue son énergie totale en étalant la variation de v_k^2 sur un intervalle de l'ordre de $k_B T_c$. L'accroissement d'énergie cinétique résultant du peuplement des états de paires au-dessus du niveau de Fermi est contrebalancé par une réduction plus importante de l'énergie potentielle sous l'effet de l'appariement. L'énergie de liaison d'une paire de Cooper est de l'ordre de 10^{-3} eV. L'ensemble des paires représente la composante superfluide du système d'électrons et se décrit par une fonction d'onde unique ayant des propriétés de cohérence sur une échelle macroscopique.

La fonction d'onde des excitations propres du supraconducteur (quasiparticules) est formée par la combinaison linéaire des fonctions d'ondes d'électrons et de trous au voisinage du niveau de Fermi. L'effet de ce mélange d'états est d'ouvrir un gap dans la courbe de dispersion des quasiparticules (Figure 1). L'énergie E_k d'une excitation de vecteur d'onde \vec{k} est reliée à l'énergie ϵ_k dans la phase normale par :

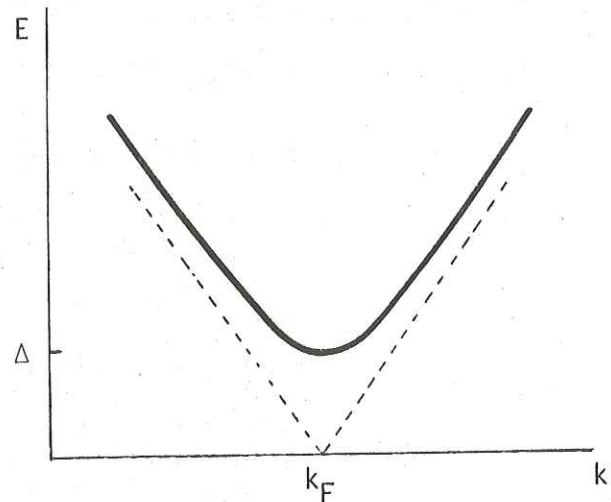
$$(1) \quad E_k^2 = \epsilon_k^2 + \Delta^2$$

Précisons ici qu' électrons et trous du métal sont considérés en représentation d'excitations, c'est-à-dire que les énergies des excitations sont repérées par rapport à l'état fondamental du gaz de Fermi sans interaction. L'origine des énergies est alors E_F .

On voit que les quasiparticules ont une énergie minimale que l'on appelle

Δ , demi-gap. C'est l'énergie qu'emporte chacune des deux quasiparticules libérées lors de la dissociation d'une paire (énergie de liaison 2Δ).

Fig. 1 : Relation de dispersion des quasiparticules dans l'état supraconducteur. Le minimum s'obtient pour $k = k_F$, vecteur d'onde de Fermi :
En tirets : état normal.



Plusieurs propriétés simples sont associées à cette relation de dispersion :
La vitesse de groupe s'annule lorsque $E_k = \Delta$ (on omettra par la suite l'indice k)

$$(2) \quad v_G = v_F \sqrt{1 - \frac{\Delta^2}{E^2}}$$

Elle n'est égale à la vitesse de Fermi (v_F) que si $E \gg \Delta$. Au voisinage du bas de bande, la forme parabolique de la courbe $E(k)$ permet d'attribuer aux quasiparticules une masse effective dynamique $m^* = \Delta/v_F^2$. On en déduira par exemple la vitesse quadratique moyenne à basse température ($T \ll T_C$) :

$$\langle v^2 \rangle = k_B T / m^* = v_F^2 k_B T / \Delta$$

La densité d'états électroniques est proportionnelle à l'inverse de la vitesse de groupe et vaut :

$$(3) \quad \frac{dN}{dE} = 2N_0 \rho(E) = 2N_0 \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}}$$

N_0 est la densité d'états normale à un spin au niveau de Fermi, $\rho(E)$ la densité d'états relative dans l'état supraconducteur. Elle diverge en bas de bande.

A basse température ($k_B T \ll \Delta$), les quasiparticules possèdent les propriétés d'un système maxwellien (au premier ordre en $\exp - \frac{\Delta}{k_B T}$).

La charge effective d'une quasiparticule n'est pas égale à la charge de l'électron e mais plutôt à $e \left(\frac{\epsilon}{E} \right)$; la partie manquante de la charge est répartie dans tout le cristal.

B. PROBABILITES DE TRANSITIONS ELECTRON-PHONON ET EFFETS DE COHERENCE

La relaxation des excitations électroniques d'un métal pur à basse température est dominée par l'interaction ^(e-p)électron-phonon. L'interaction ^(e-e)électron-électron n'a d'importance que pour les électrons de très haute énergie ou au contraire pour ceux de très faible énergie lorsque le taux de collision e-e ($\sim \epsilon^2$) l'emporte sur le taux de collision e-p ($\sim \epsilon^3$). Cette limite inférieure tombe généralement bien au-dessous des énergies ($k_B T_c$) qui nous intéressent ici. Notons également que la désexcitation d'une quasiparticule peut se faire via l'émission d'un photon comme dans un semiconducteur. Mais ces processus sont extrêmement peu probables car la densité d'états des photons est très faible. Selon Schrieffer et Ginsberg (1962), la probabilité de recombinaison d'une quasiparticule dans le plomb à 2 K est 10^7 fois plus faible par interaction électron-photon que par interaction électron-phonon.

On aura donc à considérer uniquement l'interaction avec les phonons. Le calcul des probabilités de transitions électron-phonon dans un métal se fait en général à l'aide de la théorie des perturbations du premier ordre. La probabilité associée au processus élémentaire $\vec{k} \rightarrow \vec{k}'$ est proportionnelle au carré de l'élément de matrice $|g(\vec{k}, \vec{k}')|^2$ du potentiel perturbateur pris entre les états

k et k' à un électron. Comme les états électroniques sont indépendants, les différentes probabilités de transitions sont additives. Il n'en est pas de même dans la phase supraconductrice en raison de la cohérence des états électroniques appariés. Chaque état électronique est en effet une superposition linéaire d'états à un électron du type \vec{k}_{\uparrow} et $-\vec{k}_{\downarrow}$. La transition d'une excitation de l'état \vec{k}_{\uparrow} à l'état \vec{k}'_{\uparrow} peut se faire aussi bien par le passage d'un électron de \vec{k}_{\uparrow} à \vec{k}'_{\uparrow} que par le passage de $-\vec{k}_{\downarrow}$ à $-\vec{k}'_{\downarrow}$, ce qui peut se représenter par :

$$(4) \quad \left\{ \begin{array}{l} (\vec{k}_{\uparrow}, 0) + (0, 0) \rightarrow (0, 0) + (\vec{k}'_{\uparrow}, 0) \\ (\vec{k}_{\uparrow}, 0) + (\vec{k}'_{\uparrow}, -\vec{k}'_{\downarrow}) \rightarrow (\vec{k}_{\uparrow}, -\vec{k}_{\downarrow}) + (\vec{k}'_{\uparrow}, 0) \end{array} \right.$$

L'amplitude de probabilité correspondant au premier processus contient le facteur $u_k u_{k'}$, indiquant qu'il n'y a pas d'électron dans la paire $(\vec{k}'_{\uparrow}, -\vec{k}'_{\downarrow})$ à l'état initial ni dans la paire $(\vec{k}_{\uparrow}, -\vec{k}_{\downarrow})$ à l'état final. On obtient de la même manière un facteur $v_k v_{k'}$ pour le second processus où ces états de paires sont occupés. Les u_k et v_k sont définis dans la théorie de BCS : $v_k^2 = 1 - u_k^2$ est la fraction d'occupation d'une paire dans l'état fondamental.

$$(5) \quad \left\{ \begin{array}{l} u_k^2 = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\epsilon_k}{E_k} \right) \\ v_k^2 = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\epsilon_k}{E_k} \right) \end{array} \right.$$

Sauf cas d'ambiguïté, on supprimera par la suite les indices k, k' : $\epsilon = \epsilon_k$, $\epsilon' = \epsilon_{k'}$, ...etc

Comme les amplitudes de probabilités $g(k, k')uu'$ et $g(k, k')vv'$ correspondant aux deux processus (4) ne sont pas indépendantes, ceux-ci peuvent interférer. Il s'introduit dans l'expression de la probabilité de transition totale un facteur que l'on appelle facteur de cohérence qui est d'une im-

portance primordiale pour les collisions électroniques dans la phase supraconductrice. Son expression dépend de la nature de l'interaction en jeu.

Dans le cas qui nous intéresse ici (interaction électron-phonon), l'élément de matrice $g(k, k')$ est symétrique vis-à-vis de l'échange $\vec{k} \rightarrow -\vec{k}$ et ne dépend pas du spin (cas I de B.C.S.). Le facteur de cohérence pour la diffusion d'une quasiparticule $k \rightarrow k'$ est

$$(6a) \quad (uu' - vv')^2 = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{E E' - \Delta^2}{E E'} \right)$$

Il existe également un facteur de cohérence pour les processus mettant en jeu la création ou la recombinaison de deux quasiparticules :

$$(6b) \quad (uv' + vu')^2 = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{E E' - \Delta^2}{E E'} \right)$$

On voit que dans le calcul des transitions de probabilités dans la phase supraconductrice, le carré de l'élément de matrice $|g(k, k')|^2$ doit être multiplié par les facteurs de cohérence. C'est un résultat bien vérifié de la théorie de B.C.S.

Le cas II de B.C.S. correspond à une interaction anti-symétrique vis-à-vis de l'échange $\vec{k} \uparrow \rightarrow -\vec{k} \downarrow$ (par exemple, interaction électromagnétique ou relaxation nucléaire). Les facteurs de cohérence portent le signe opposé $(uu' + vv')^2$ et $(uv' - vu')^2$.

Les processus élémentaires de l'interaction phonon-quasiparticules sont illustrés sur la figure 2. Nous ne considérons ici que les processus à trois particules.

Une quasiparticule peut être diffusée d'un état d'énergie E vers un état d'énergie $E' = E \pm \Omega$ par émission ou absorption d'un phonon (Ω) (Figure 2a).

Elle peut également s'annihiler par recombinaison avec une autre quasiparticule et émission d'un phonon $\Omega = E + E'$ (Fig. 2b). Le mécanisme inverse est la dissociation d'une paire de Cooper par absorption d'un phonon $\Omega > 2\Delta$.

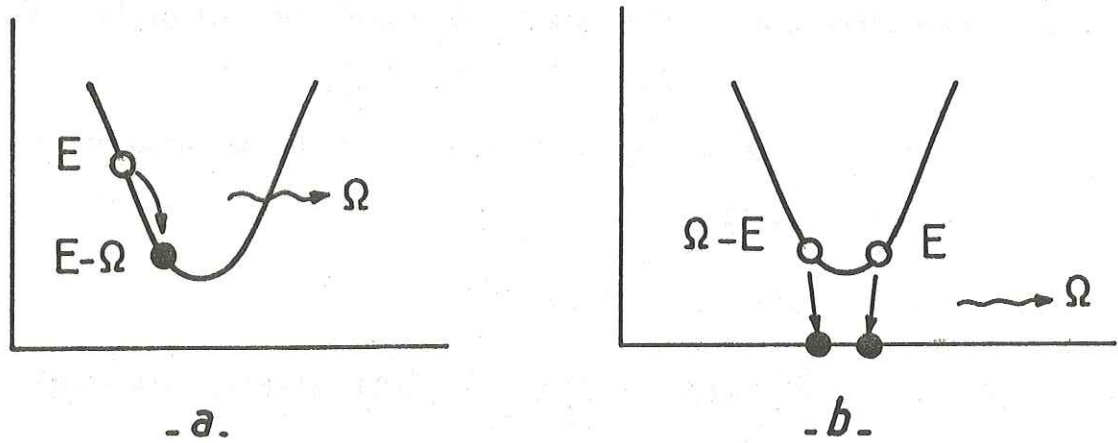


Fig. 2 : Processus fondamentaux de collisions électron-phonon dans un supraconducteur : a) Diffusion inélastique d'une quasiparticule par émission (ou absorption) d'un phonon. b) Formation d'une paire par annihilation de deux quasiparticules et émission d'un phonon de recombinaison. Processus inverse: destruction d'une paire.

Les probabilités de transition s'obtiennent par la règle d'or de Fermi en utilisant les facteurs de cohérence appropriés :

Pour les processus a) :

$$P_S^{\pm}(k, k') = Q_S^{\pm}(k, k') \left(n_q + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \right) (f_k)(1-f_{k'}) \quad (7a)$$

$$\text{avec } Q_S^{\pm}(k, k') = \frac{2\pi}{\hbar} |g(k, k')|^2 \left\{ \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\epsilon \epsilon' - \Delta^2}{\epsilon \epsilon'} \right) \right\} \delta(E' - E \pm \Omega) \delta(k' - k \pm q) \quad (7b)$$

Cette probabilité est formellement identique, au facteur de cohérence près, à celle que l'on obtient pour le processus $k \rightarrow k'$ dans l'état normal. $n_q = n(\Omega)$ et $f_k = f(E)$ sont les facteurs d'occupation des phonons et des quasiparticules (notés n et f). Le signe $+$ se rapporte à l'émission et le signe $-$ à l'absorption d'un phonon d'énergie Ω et de vecteur d'onde \vec{q} . On néglige les processus Umklapp.

Le taux de création de deux quasiparticules k et k' par absorption d'un phonon (processus b) s'écrit :

$$(8a) \quad P_c(k, k') = Q_c(k, k') n_q (1-f_k)(1-f_{k'})$$

$$(8b) \quad \text{avec } Q_c(k, k') = \frac{2\pi}{\hbar} |g(k, k')|^2 \left\{ \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\epsilon\epsilon' - \Delta^2}{EE'} \right) \right\} \delta(E+E'-\Omega) \delta(k+k'-q)$$

Les termes d'occupation indiquent que les états de quasiparticules k et k' doivent être initialement vides. Pour le processus inverse (P_a : annihilation de deux quasiparticules) ces états sont initialement occupés, et puisqu'il y a émission d'un phonon, la probabilité s'écrit :

$$(8c) \quad P_a(k, k') = Q_c(k, k') (1+n_q) f_k f_{k'}$$

Les fonctions δ présentes dans (8) et (9) imposent la conservation de l'énergie et du moment. Elles supposent que les critères :

$$(9) \quad \omega\tau_i \gg 1 \quad \text{et} \quad ql_i \gg 1 \quad \left(\omega = \Omega/\hbar \right)$$

sont remplis, ce qui est généralement le cas pour les phonons thermiques dans un métal pur. τ_i et l_i sont la durée de vie et le libre parcours moyen des électrons, ω est la fréquence angulaire du phonon.

Les équations (7) et (8) permettent de déterminer l'évolution des distributions de quasiparticules et de phonons sous l'effet de collisions électron-phonon.

C. EVOLUTION DES DISTRIBUTIONS SOUS L'EFFET DES COLLISIONS ELECTRON-PHONON

Le taux d'évolution de la distribution de quasiparticules f_k s'obtient en sommant les différents processus élémentaires mettant en jeu les transitions vers l'état k (signe +) ou hors de l'état k (signe -). Cette sommation s'effectue sur les états de phonons en tenant compte de la règle de conservation du moment. Pour déterminer le taux d'évolution de n_q (distribution des phonons) on compte avec un signe + les transitions avec émission d'un phonon et avec un signe - les transitions avec absorption d'un phonon. On obtient :

$$(10a) \quad \frac{df_k}{dt} = \sum_q \left\{ P_S(k+q, k) - P_S(k, k+q) + P_S(k-q, k) - P_S(k, k-q) + P_C(k, q-k) - P_A(k, q-k) \right\}$$

$$(10b) \quad \frac{dn_q}{dt} = \sum_k \left\{ P_S(k+q, k) - P_S(k, k+q) - P_C(k, q-k) + P_A(k, q-k) \right\}$$

Dans ces équations, les termes du type P_S donnent la contribution des processus de diffusion (Fig. 2a), les autres (P_C et P_A) correspondent aux processus à deux quasiparticules (Fig. 2b).

Comme les énergies importantes ($\sim \Delta$) sont toujours faibles devant l'énergie de Fermi, les collisions mettent en jeu des transitions entre états voisins de la surface de Fermi. Les sommations sur \vec{k} et \vec{q} s'effectuent simplement dans le cas d'une surface de Fermi sphérique.

Soit θ l'angle formé par \vec{k} et \vec{q} . On a, pour $\vec{k}' = \vec{k} + \vec{q}$:

$$(11) \quad \epsilon' = \epsilon + \frac{\hbar^2 q}{m} k \cos \theta + \frac{\hbar^2 q^2}{2m} \quad \text{où } m \text{ est la masse de l'électron}$$

On utilise la transformation

$$\sum_{\vec{q}} \rightarrow \frac{1}{8\pi^3} \int q^2 dq \int_0^\pi 2\pi \sin \theta d\theta = \int NF(\Omega) d\Omega \int_0^\pi \frac{\sin \theta d\theta}{2}$$

où N est le nombre de mailles par unité de volume et $F(\Omega)$ la densité d'états de phonons donné par $F(\Omega) = \Omega^2 / 2\pi^2 \hbar^3 s^3 N$ dans le modèle de Debye (s : vitesse du son).

A l'aide de (11) l'intégration sur θ peut être transformée en une intégration sur ε' . Puisque les valeurs importantes de q sont telles que $\Omega \sim kT_c$ et que ε et $\varepsilon' \sim \Delta$, on a :

$$\frac{\hbar^2 k q}{m} \gg \varepsilon, \varepsilon' \text{ et } \hbar^2 q^2 / 2m$$

On prendra donc les bornes d'intégration sur ε' égales à $\pm \infty$.

Finalement :

$$(12) \quad \sum_{\vec{q}} \int_0^{\Omega_D} N F(\Omega) d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon' \quad \frac{m}{\hbar^2 q k}$$

Considérons par exemple le terme $P_S(k, k+q)$ dans (10a). Les autres termes se traitent de manière identique. Compte tenu de (12) on a :

$$(13) \quad \sum_{\vec{q}} P_S(k, k+q) = \frac{2\pi}{\hbar} \int F(\Omega) d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon' \quad \frac{mN}{\hbar^2 q k} |g(k, k+q)|^2 \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\varepsilon \varepsilon' - \Delta^2}{E E'}\right) (1+n) f(1-f')$$

$$\times \delta(E' - E - \Omega)$$

On utilise pour $g(k, k+q)$ l'approximation des électrons libres :

$$(14) \quad |g(k, k')|^2 = \frac{\hbar C^2}{2\rho\omega} q^2$$

où C est le potentiel de déformation.

Les bornes d'intégration sur ε' peuvent être ramenées à 0, $+\infty$ en éliminant le terme en $\varepsilon \varepsilon'$ impair en ε' . La dernière étape est le changement de variable $\varepsilon' \rightarrow E'$ qui introduit la densité d'états relative $\rho(E')$. Après intégration sur E' (immédiate grâce à la fonction δ) on obtient :

$$(15) \quad \sum_{\vec{q}} P_S(k, k+q) = \frac{2\pi}{\hbar} K \int F(\Omega) d\Omega \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) (1+n) f(E) (1 - f(E+\Omega))$$

$$(16) \quad K = \frac{NC^2}{4\rho s v_F} \quad v_F = \frac{\hbar k}{m} \text{ est la vitesse de Fermi.}$$

En tenant compte de tous les termes de (10a), on obtient :

$$\begin{aligned}
 \frac{df(E)}{dt} = & \frac{2\pi}{\hbar} K \int_0^\infty F(\Omega) d\Omega \rho(E+\Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) \left[f(E+\Omega)(1-f(E))(1+n(\Omega)) - f(E)(1-f(E+\Omega))n(\Omega) \right] \\
 (17) \quad & + \frac{2\pi}{\hbar} K \int_0^{E-\Delta} F(\Omega) d\Omega \rho(E-\Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E-\Omega)}\right) \left[f(E-\Omega)(1-f(E))n(\Omega) - f(E)(1-f(E-\Omega))(1+n(\Omega)) \right] \\
 & + \frac{2\pi}{\hbar} K \int_{E+\Delta}^\infty F(\Omega) d\Omega \rho(\Omega-E) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) \left[(1-f(E))(1-f(\Omega-E))n(\Omega) - f(E)f(\Omega-E)(1+n(\Omega)) \right]
 \end{aligned}$$

Le produit $KF(\Omega)$ sera souvent écrit $b\Omega^2$.

Les bornes d'intégration proviennent simplement de la condition d'annulation de la densité d'états $\rho(E)$ lorsque $E < \Delta$.

Le calcul de $dn(\Omega)/dt$ se fait de manière analogue. Tout d'abord, on transforme la sommation sur \vec{k} en une intégration sur les énergies ϵ et ϵ' :

$$(18) \quad \sum_{\vec{k}} \rightarrow \frac{2}{8\pi^3} \int 2\pi k^2 dk \int \sin\theta d\theta = 2N_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon' \frac{m}{\hbar^2 q k}$$

où $N_0 = m^2 v_F / 2\pi^2 \hbar^3$ est la densité d'états à un seul spin prise au niveau de Fermi. On obtient à partir de (10b) et (18) :

$$\begin{aligned}
 (19) \quad \frac{dn(\Omega)}{dt} = & \frac{2\pi}{\hbar} \cdot \frac{4N_0}{N} \\
 & \times \left\{ \int_{\Delta}^{\infty} \rho(E) \rho(E+\Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) \left[f(E+\Omega)(1-f(E))(1+n(\Omega)) - f(E)(1-f(E+\Omega))n(\Omega) \right] dE \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2} \int_{\Delta}^{\Omega-\Delta} \rho(E) \rho(\Omega-E) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(\Omega-E)}\right) \left[f(E)f(\Omega-E)(1+n(\Omega)) - (1-f(E))(1-f(\Omega-E))n(\Omega) \right] dE \right\}
 \end{aligned}$$

Dans les équations (17) et (19) les processus de diffusion se reconnaissent à leur terme de cohérence $(1-\Delta^2/EE')$. Ce facteur est toujours inférieur à 1. Il s'annule lorsque les quasiparticules ont une énergie voisine de Δ . Au contraire, le terme de $(1+\Delta^2/EE')$ associé aux processus de recombinaison est toujours plus grand que 1. On voit donc que les effets de cohérence défavorisent les processus de diffusion inélastique au profit des processus à deux particules. Cette propriété est une particularité de l'interaction électron-phonon. On

aurait l'effet inverse pour l'interaction électromagnétique. Nous y reviendrons.

Les équations (18) et (19) décrivent le système couplé des phonons et des quasiparticules. Elles ont été utilisées pour la première fois par Bardeen et al. (1959), pour calculer la conductivité thermique à l'état supraconducteur et sont à la base des calculs récents des distributions (Chang et Scalapino, 1977).

Remarque

Le calcul précédent repose sur des simplifications (théorie des électrons libres, surface de Fermi sphérique ...) qui ignorent un certain nombre d'aspects fondamentaux : couplage électron-phonon transverse, anisotropie du gap et de l'interaction, effets de couplage fort ... En fait, les modifications apportées par un calcul plus complet sont peu importantes tant que l'on ne considère pas l'anisotropie (Ce problème ne sera évoqué que dans le chapitre III).

Prange et Kadanoff (1964) ont établi, par une méthode des fonctions de Green, les équations cinétiques couplées phonons-quasiparticules dans le cas du couplage fort. Leurs résultats ne diffèrent des expressions (17) et (19) que par la substitution d'un coefficient de couplage effectif électron-phonon $\alpha^2(\Omega)$ à la constante K (définie par Eq. 16). Ce coefficient inclut les contributions de toutes les polarisations de phonons. Il est défini comme la moyenne du carré de l'élément de matrice de l'interaction $g(k, k')$ sur tous les états finaux k' couplés à l'état initial k par un phonon d'énergie Ω . Le résultat est moyenné sur les différentes branches acoustiques et sur la surface de Fermi :

$$(20) \quad \alpha^2(\Omega) F(\Omega) = \left\langle \sum_{\lambda k'} |g(k, k')|^2 \delta(\Omega - \hbar\omega_{\lambda}(k-k')) \right\rangle_{SF}$$

$\hbar\omega_{\lambda}(q)$ est l'énergie du phonon de vecteur d'onde q et de polarisation λ et

$F(\Omega) = \frac{1}{N} \sum_{\lambda q} \delta(\Omega - \hbar\omega_{\lambda}(q))$ est la densité d'états de phonons.

Toute l'information utile sur la surface de Fermi et sur les fonctions d'ondes électroniques du métal est contenue dans le paramètre de couplage $\alpha^2(\Omega)F(\Omega)$. Ce paramètre est donné expérimentalement par les mesures de courant tunnel inélastique (Mc Millan et Rowell, 1969).

Dans le modèle des électrons libres que nous avons utilisé ci-dessus, $\alpha^2(\Omega)F(\Omega)$ est représenté par une loi quadratique $b\Omega^2$ reflétant la dépendance en Ω^2 de la densité d'états de phonons. Cette loi suffit dans beaucoup de cas et s'applique en particulier à l'étain. b est habituellement tiré des mesures d'effet tunnel, bien que la précision de celles-ci aux très basses fréquences (où la loi en Ω^2 s'applique) soit généralement médiocre.

Dans le modèle de Debye de la densité d'états des phonons, b est donné par $b = C^2/8\pi^2 \rho \hbar^3 s^4 v_F$.

D. TEMPS CARACTERISTIQUES DU SYSTEME

Les durées de vie pour l'interaction électron-phonon à l'équilibre thermique sont contenues implicitement dans les équations d'évolution des populations f et n (Equ. 17 et 19). Par commodité, on les exprime en fonction de deux temps caractéristiques propres à chaque métal (Kaplan et al., 1976) :

$$(21 \text{ a}) \quad \tau_o = \frac{\hbar}{2\pi b (k_B T_c)^3}$$

$$(21 \text{ b}) \quad \tau_o^{\text{ph}} = \frac{\hbar N}{4\pi^2 N_o \alpha^2 \Delta_o}$$

qui sont, à un facteur numérique près, les durées de vie des électrons (τ_o)

et des phonons (τ_0^{ph}) dans l'état normal à $T = T_c$.

On distingue : (Fig. 3)

1. Temps de recombinaison des quasiparticules $\tau_r(E)$:

$$(22a) \quad \tau_r^{-1} = \frac{1}{\tau_0 (k_B T_c)^3} \int_{E+\Delta}^{\infty} \Omega^2 d\Omega \rho(\Omega-E) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(\Omega-E)}\right) [n(\Omega) + f(\Omega-E)]$$

Ce processus est une réaction binaire. Une quasiparticule n'a de chance de se recombiner que si elle trouve un partenaire. Le taux de recombinaison varie donc en proportion de la population thermique de quasiparticules, c'est-à-dire en $\exp(-\Delta/k_B T)$, ce que l'on voit sur l'expression approchée dans la limite des basses températures ($T < T_c/2$) :

$$(22b) \quad \tau_r^{-1} = \tau_0^{-2} \frac{(E+\Delta)^3}{8E} \sqrt{\pi} \left(\frac{2\Delta}{k_B T_c}\right)^{5/2} \left(\frac{T}{T_c}\right)^{1/2} \exp - \Delta/k_B T$$

Aux énergies voisines de Δ , τ_r se met également sous la forme :

$$(22c) \quad \tau_r = \frac{1}{2RN_T}$$

où R est une constante indépendante de T et égale à $2\pi b \Delta^2 / \hbar N_0$ et N_T la densité thermique des quasiparticules :

$$(23) \quad N_T = 2N_0 \sqrt{2\pi \Delta k_B T} \exp -\Delta/k_B T$$

2. Temps de collision inélastique des quasiparticules sur les phonons $\tau_s(E)$.

$$(24a) \quad \tau_s^{-1} = \frac{1}{\tau_0 (k_B T_c)^3} \left[\int_0^{\infty} \Omega^2 d\Omega \rho(E+\Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) [n(\Omega) + f(E+\Omega)] \right. \\ \left. + \int_0^E \Omega^2 d\Omega \rho(E-\Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E-\Omega)}\right) [1+n(\Omega) - f(E-\Omega)] \right]$$

Ce taux de collision diminue avec T car il y a de moins en moins de phonons susceptibles de diffuser les quasiparticules. A température nulle, l'émission spontanée (seconde intégrale avec $n = f = 0$) impose une valeur finie à $\tau_s(E > \Delta)$. Ce mécanisme de relaxation est exactement le même que dans la phase

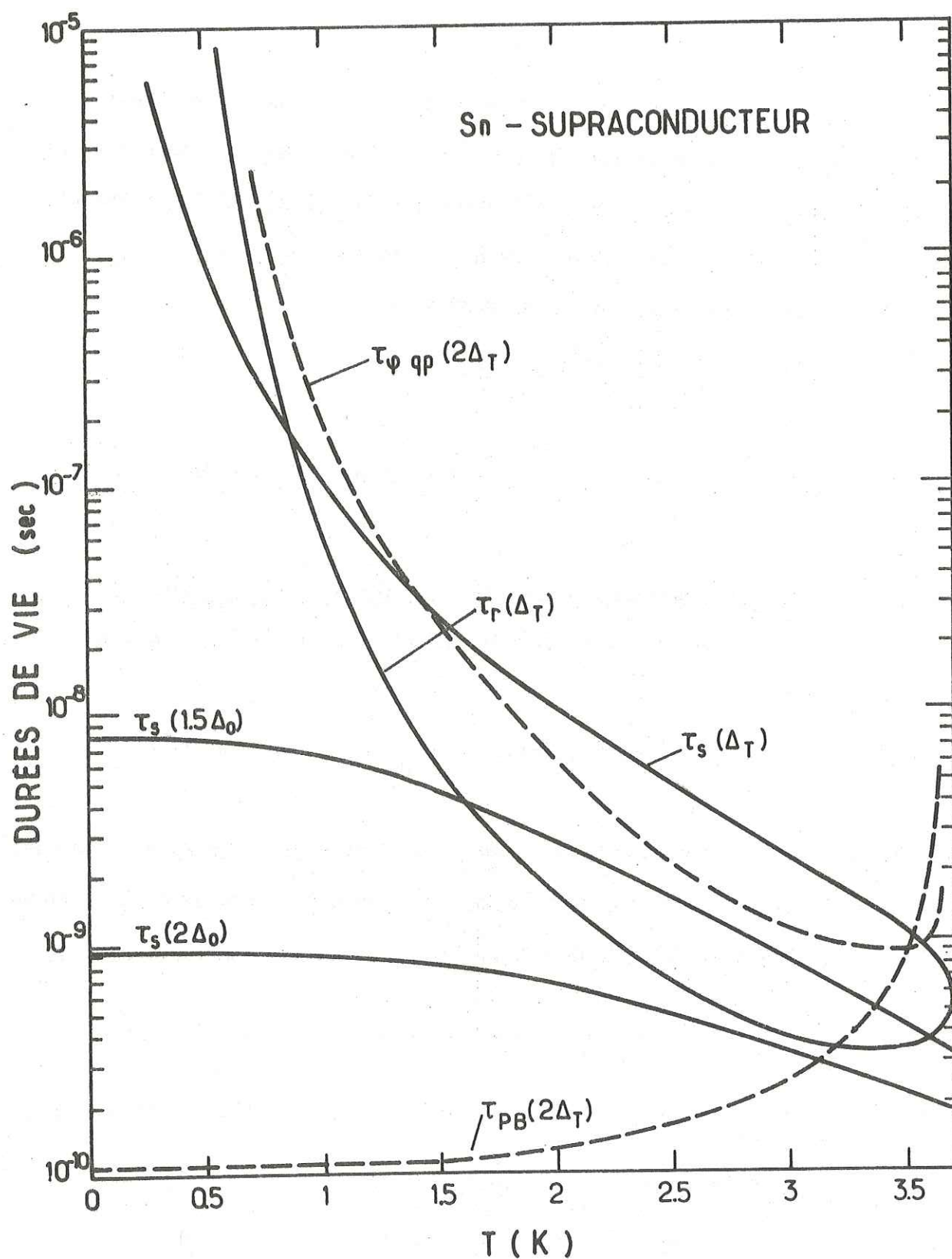


Fig. 3 : Durée de vie des phonons (traits interrompus) et des quasiparticules (traits pleins) dans Sn supraconducteur en fonction de la température (selon théorie de Kaplan et al. 1976). Δ_T est le demi-gap à la température T.

normale. A très haute énergie τ_S^{-1} varie en E^3 . Il se produit cependant une modification importante au voisinage de $E = \Delta$: le facteur de cohérence s'annule comme $E - \Delta$ et la densité d'état $\rho(E)$ diverge comme $(E - \Delta)^{-1/2}$. Le résultat est une loi en $(E - \Delta)^{7/2}$ à température nulle, ou en $T^{7/2}$ pour $E = \Delta$.

La limite basse température de τ_S est donnée par :

$$(24 \text{ b}) \quad \tau_S^{-1}(\Delta) = \tau_0^{-1} \Gamma\left(\frac{7}{2}\right) \zeta\left(\frac{7}{2}\right) \left(\frac{k_B T_C}{2\Delta_0}\right)^{1/2} \left(\frac{T}{T_C}\right)^{7/2}$$

Au voisinage de T_C , $\tau_S(\Delta)$ et $\tau_r(\Delta)$ tendent vers une même limite.

3. Temps d'absorption des phonons par les quasiparticules $\tau_{\psi qp}(\Omega)$.

C'est le mécanisme inverse du précédent. Il est caractérisé par le même facteur de cohérence. On a :

$$(25a) \quad \tau_{\psi qp}^{-1} = \frac{2}{\pi \Delta_0 \tau_0} \text{ph} \int_{\Delta}^{\infty} dE \rho(E) \rho(E + \Omega) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(E + \Omega)}\right) [f(E) - f(E + \Omega)]$$

Cette probabilité d'absorption présente le même type de dépendance en température que τ_r^{-1} , et reflète l'appauvrissement en électrons normaux à basse température. Elle s'explicité sous forme simple dans deux cas particuliers :

$$(25 \text{ b}) \quad \frac{1}{\tau_{\psi qp}} = \frac{1}{\pi \tau_0 \text{ph}} \sqrt{\frac{\Omega}{\Omega + 2\Delta}} \frac{N_T}{N_0} \quad T \ll T_C, \quad \Omega/k_B$$

$$(25c) \quad \frac{1}{\tau_{\psi qp}} = \frac{1}{\pi \tau_0 \text{ph}} f(\Delta) \quad \Omega \ll k_B T, \quad \Delta \text{ (limite ultrasonore)}$$

4. Temps d'absorption par cassure de paire $\tau_{PB}(\Omega)$

$$(26a) \quad \frac{1}{\tau_{PB}} = \frac{1}{\pi \Delta_0 \tau_0} \text{ph} \int_{\Delta}^{\Omega - \Delta} dE \rho(E) \rho(\Omega - E) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(\Omega - E)} (1 - f(E) - f(\Omega - E))\right)$$

Ce processus n'existe pas à basse énergie. Il apparaît de façon discontinue lorsque les phonons ont suffisamment d'énergie ($\Omega > 2\Delta$) pour dissocier une paire.

τ_{PB} dépend peu de la température et l'on a pour $T < T_C/2$:

$$(26b) \quad \tau_{PB}(2\Delta) \approx \tau_0^{ph}$$

On peut voir sur la Fig. 3 que le saut d'atténuation à travers $\Omega = 2\Delta$, $(\tau_{PB}^{-1} / \tau_{qp}^{-1})$, atteint 4 ordres de grandeur pour l'étain à 0.8 K et encore plus à plus basse température. Cette discontinuité est l'effet de la divergence de la densité d'états.

Pour plus de précision, nos calculs numériques portés sur la Figure 3 ont été faits non pas à partir des équations 21a et 21b établies plus haut, mais à partir de τ_0 et τ_0^{ph} de Kaplan, qui contiennent en plus le facteur de renormalisation de la masse. Les courbes de la Fig. 3 peuvent se transposer à tout autre métal à couplage faible par simple remplacement de τ_0 et τ_0^{ph} . Nous indiquons dans le tableau ci-dessous les paramètres caractéristiques de quelques supraconducteurs (extrait de Kaplan et al. 1976).

	T_C K	Ω_D/k_B K	E_F eV	N_0 $10^{21} \text{ eV}^{-1} \text{ cm}^{-3}$	N 10^{22} cm^{-3}	$10^3 b$ meV^{-2}	τ_0 nsec	τ_0^{ph} psec
Al	1.19	428	13.5	12.2	6.02	0.317	438	242
Nb	9.2	275	6.18	31.7	5.57	4	0.149	4.2
Sn	3.75	200	11.6	8.14	3.7	2.32	2.3	110
Pb	7.19	105	10.9	8.63	3.3	5.72	0.196	34

5. Autres temps de collision

Les phonons peuvent perdre leur énergie par couplage anharmonique. Celui-ci a été étudié par Orbach et Vredevoe (1964) et par Klemens (1967) dans les conditions $\Omega \gg k_B T$ qui nous intéressent ici. Le mécanisme le plus efficace est

la désexcitation spontanée d'un phonon (Ω_1) en deux phonons Ω_2 et Ω_3 d'énergie moitié. Les relations de conservation de l'énergie et du moment pour un processus à trois phonons imposent les règles de sélection $L \leftrightarrow T+T$ et $L \leftrightarrow T+L$. On suppose ici que la courbe de dispersion ne possède que deux vitesses acoustiques s_L et s_T . Dans l'hypothèse d'un milieu isotrope non dispersif, le temps de vie phonon-phonon $\tau_{\varphi\varphi}$ s'exprime en fonction du paramètre de Gruneisen γ ($\gamma \approx 2$ pour les métaux usuels) :

$$(27) \quad \frac{1}{\tau_{\varphi\varphi}} = \frac{3\pi}{4\sqrt{2}} \gamma^2 \frac{s_L}{s_T} \frac{\Omega^2}{\hbar M s_L^2} \left(\frac{\Omega}{\Omega_D}\right)^2 \quad \text{à } T = 0$$

Cette équation a été établie pour la désexcitation des phonons L à température nulle. On note que $\tau_{\varphi\varphi}^{-1}$ varie en Ω^5/Ω_D^3 (M est la masse atomique).

A plus haute température, l'Equation (27) doit être corrigée par le facteur multiplicatif donné, pour $\Omega \gg k_B T$, par :

$$1 + n(\Omega_2) + n(\Omega_3) + F(\Omega, T) \approx 1 + 4 \frac{k_B T}{\Omega} + \left(\frac{k_B T}{\Omega}\right)^4$$

où $n(\Omega_2)$ et $n(\Omega_3)$ sont les populations thermiques des états finaux Ω_2 et $\Omega_3 \approx \Omega_1/2$ et $F(\Omega, T)$ un facteur dû à la contribution des processus induits thermiquement ($L + T \rightarrow L$) : Ces termes restent peu importants aux températures de l'hélium liquide pour les phonons $\Omega \sim 2\Delta$.

Nous obtenons, pour l'étain, $\tau_{\varphi\varphi}(2\Delta) = 1.1 \mu\text{sec}$ à 0K en prenant : $\gamma = 2$, $M = 1.97 \cdot 10^{-22}$ g, $s_L = 3.3 \cdot 10^5$ cm/sec, $s_L/s_T = 2$, et $\theta_D = 195$ K (température de Debye).

Pour d'autres matériaux $\tau_{\varphi\varphi}(2\Delta)$ doit être changé en proportion de θ_D^3/T_C^5 ce qui donne respectivement 6 nsec pour Pb, 33 nsec pour Nb et 3,3 msec pour Al.

L'importance des collisions des phonons sur les parois ne se manifeste que pour les échantillons en film mince. Le temps caractéristique τ_{γ} des phonons pour ces processus est lié au temps de transit dans l'échantillon.

On l'écrit généralement sous la forme d'un temps de fuite :

$$(28) \quad \tau_Y = \frac{4d}{\eta s}$$

d est l'épaisseur de film, s la vitesse moyenne du son et η un coefficient d'interface ($0 < \eta < 1$) dépendant des matériaux mais également de la qualité de la surface.

Selon les modèles acoustiques d'interface, il existe une limite inférieure à τ_Y y compris lorsque $d \rightarrow 0$. Elle provient de l'existence d'un cône de réfraction en dehors duquel les phonons ne peuvent pas s'échapper du film. De façon générale, τ_Y est de l'ordre de la nanoseconde. Il atteindrait la microseconde ou plus dans les monocristaux massifs.

Les collisions avec les imperfections du réseau auront peu d'importance sur la dynamique des phonons car ce sont des collisions élastiques. Elles peuvent être fortement réduites dans les monocristaux de haute pureté, sauf l'interaction avec les défauts de masse (isotopes) qui produit une diffusion Rayleigh (section efficace en q^4) des phonons de courte longueur d'onde. La longueur d'onde de coupure correspondant à un libre parcours de 1 mm est déterminée, pour un matériau donné, par la racine carrée du défaut de masse $(\delta A/A)^{1/2}$. $(\delta A)^2$ est l'écart quadratique moyen autour de la masse A de l'élément (Ziman, 1964). Ce rapport est strictement 0 pour Al et Nb, matériaux isotopiquement purs. Par comparaison avec le Germanium, où l'on connaît le nombre d'ondes de coupure isotopique ($q_i \approx 9.8 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, D. Huet, thèse 1978), on voit que dans les métaux supraconducteurs usuels q_i varie peu entre 10^7 et $2 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-1}$ (le rapport $(\delta A/A)^{1/2}$ vaut respectivement 0.15, 0.13, 0.16, 0.067 et 0.12 pour Ge, Sn, Zn, Pb, et Ga). Les énergies de coupure correspondantes s'échelonnent entre 12 K

(Pb, transverse lent) et environ 50 K. Sauf pour le plomb, ce mécanisme d'atténuation reste peu important aux énergies voisines du gap (~ 10 K).

Enfin, il faut considérer les collisions élastiques des quasiparticules sur les impuretés. Selon Bardeen et al. (1959), il existe un temps de relaxation pour la diffusion élastique des quasiparticules dans l'état supraconducteur, relié au temps de collision à l'état normal par $\tau_i^S = \tau_i^N E/\epsilon$. Le libre parcours moyen correspondant est identique dans les deux phases. Pour des monocristaux de haute pureté, $\ell_i \gtrsim 0.1$ mm, et $\tau_i \gtrsim 2 \cdot 10^{-10}$ sec. Cette valeur peut être inférieure aux temps caractéristiques (τ_r et τ_s) de l'interaction électron-phonon (étain voir Fig. 3), ou du même ordre de grandeur pour des matériaux à couplage fort (Pb). Nous verrons que les conséquences sont importantes.

Les collisions directes entre deux quasiparticules sont extrêmement peu probables. Dans un métal normal, le taux de collision électron-électron (τ_{ee}^{-1}) varie en $(k_B T/E_F)^2$ et vaut typiquement 10^6 sec^{-1} à 4.2 K. La transition supraconductrice affaiblit encore davantage ce taux de collision, en proportion de la population thermique de quasiparticules (Narayanamurti et al. 1978):

$$(29) \quad \frac{\tau_{qp-qp}^{-1}}{\tau_{ee}^{-1}} \sim \left(\frac{T}{T_c}\right)^{1/2} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}}$$

Le temps de collision seront de l'ordre de la milliseconde à 1.2 K (dans l'étain).

E. PROPRIETES DU SYSTEME FAIBLEMENT COUPLE

On peut représenter le système électron-phonon par un ensemble de quatre sous-systèmes reliés par les interactions que nous venons de discuter.

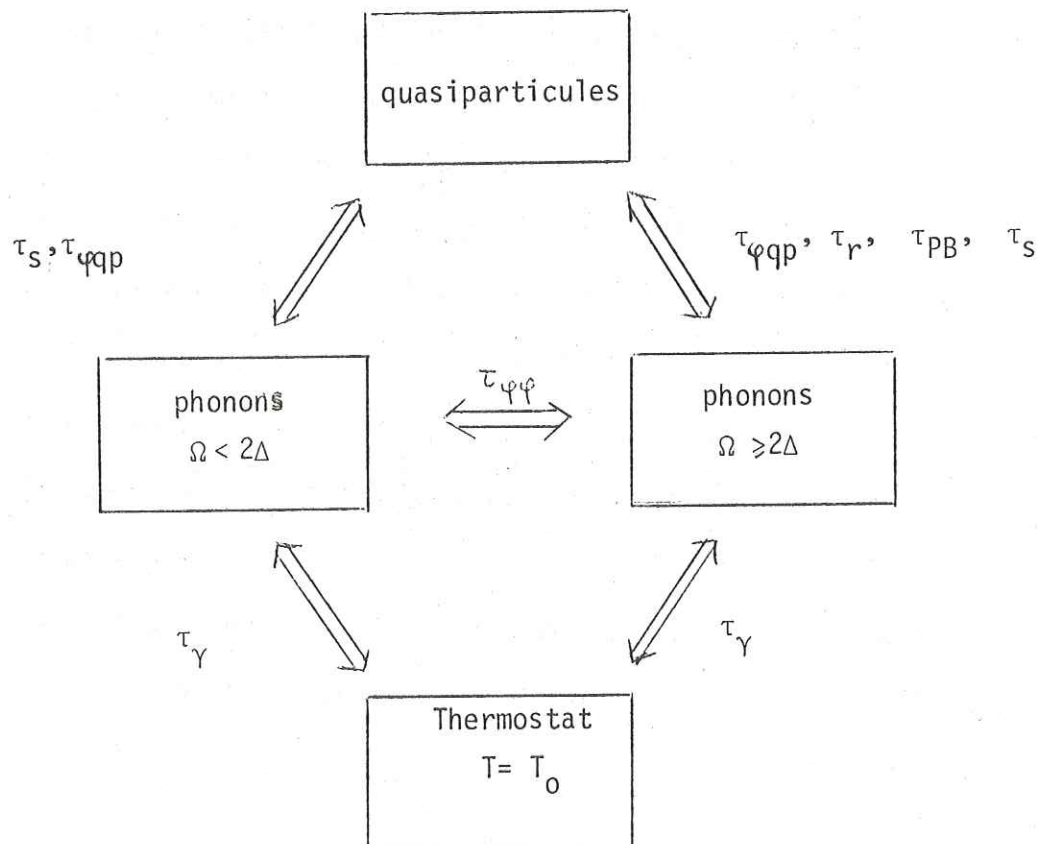
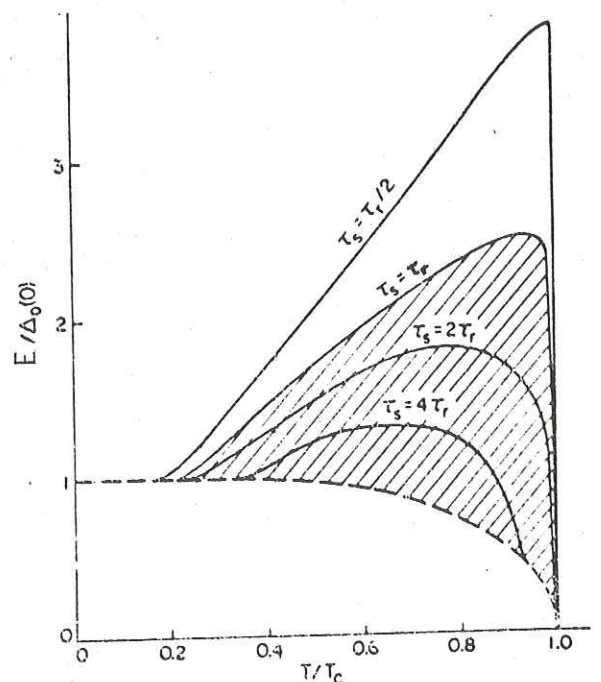


Fig.4 : Représentation schématique du système électron-phonon en interaction.

Les quasiparticules sont couplées avec les phonons $\Omega > 2\Delta$ par recombinaison-dissociation de paires et avec l'ensemble des phonons par les collisions inélastiques de temps τ_s et τ_{ppq} . Les phonons interagissent avec le thermostat par les collisions sur les parois τ_γ . Le thermostat est constitué par le substrat et éventuellement le bain d'hélium pour un film mince supraconducteur. Enfin, les collisions anharmoniques $\tau_{\phi\phi}$ couplent les phonons des deux groupes. Pour compléter ce diagramme, il faudrait préciser la manière par laquelle le système est excité. Nous verrons plus loin différentes méthodes d'injection (quasiparticules, photons, phonons).

Examinons quelques cas d'intérêt pratique. Les durées de vie à l'équilibre thermique ne seront considérées ici qu'à titre indicatif car elles peuvent être fortement modifiées si les distributions sont non thermiques. Selon l'importance relative de τ_s et de τ_r (Fig.5), les quasiparticules se coupleront préférentiellement avec les phonons de basse énergie ou de haute énergie ($\Omega > 2\Delta$).

Fig. 5 : Courbes du plan E-T pour lesquels τ_s égal $\tau_r/2$, τ_r , $2\tau_r$ et $4\tau_r$. La courbe en traits interrompus représente le minimum d'énergie $E = \Delta$ des quasiparticules à la température T. Dans la région hachurée, la recombinaison domine les processus de relaxation. (d'après Kaplan et al., 1976).



1. Système hors d'équilibre chimique mais en équilibre thermique. C'est le cas d'un film mince en très bon contact thermique avec un substrat ($\tau_\gamma \ll \tau_{ppq}, \tau_{PB}$)

et placé à basse température ($\tau_S \ll \tau_r$, aire non hachurée de la Fig.5). Cette dernière condition signifie que les quasiparticules se thermalisent à la température du substrat via les phonons. Mais, comme τ_r est très grand, elles peuvent sous l'effet d'une injection tunnel par exemple s'accumuler pour aboutir à une population supérieure à la population thermique. Cette situation se décrit par un potentiel chimique effectif ($\mu^* \neq 0$), effet analogue au déplacement du niveau de Fermi dans un semiconducteur dopé. Owen et Scalapino (1972) ont construit un modèle, le modèle μ^* , qui prédit une transition de phase du premier ordre pour une valeur critique de la population de quasiparticules. La distribution des phonons est la distribution thermique $n(\Omega, T_0)$ et la distribution des quasiparticules (en régime stationnaire) est simplement une distribution de Fermi-Dirac $f(E - \mu^*, T_0)$ de potentiel chimique $\mu^* \sim \Delta$.

La transition du premier ordre n'est pas observée expérimentalement car il se produit à plus faible densité, une instabilité dissipative (Chang et Scalapino, 1974). Par contre, la distribution μ^* a réellement été observée par Willemssen et Gray, en 1978. L'expérience est faite dans une configuration 3 couches formant deux jonctions tunnel Al-Al et Al-Pb. La première sert à l'injection, la seconde à la détection. Pour une valeur quelconque de l'énergie des quasiparticules, la distribution peut être représentée par une distribution à deux paramètres, μ^* et T^* . Lorsque l'injection est faite juste à $E = \Delta$, ces paramètres prennent les valeurs du modèle ci-dessus : $\mu^* = \Delta$ et $T^* = T_0$.

2° Système décrit par une température effective T^* de quasiparticules : Définir une température effective suppose que les échanges interparticulaires soient très fréquents. C'est le cas par exemple des quasiparticules appartenant à la région

hachurée de la Fig.5 , à condition de considérer globalement le système quasiparticules + phonons $\Omega > 2\Delta$. Les processus de recombinaison dissociation de paires jouent alors le rôle de processus internes. Le couplage avec les phonons de basse énergie reste faible ($\tau_p < \tau_s$). Avec l'hypothèse d'une distribution $f(E, T^*)$ pour les quasiparticules, on peut calculer explicitement la distribution de phonons (N. Perrin, 1980). Dans un film mince, en régime stationnaire, $n(\Omega)$ est donnée par la moyenne des distributions thermiques à T_0 et T^* pondérée par les taux de couplage avec le thermostat (τ_Y^{-1}) et avec les quasiparticules τ_Y^{*-1} (égal à la somme des inverses des durées de vie de phonons $\tau_{qp}^{*-1} + \tau_{PB}^{*-1}$ calculées pour la distribution $f(E, T^*)$):

$$(30) \quad n(\Omega) = \frac{n(\Omega, T_0) \tau_Y^{-1} + n(\Omega, T^*) \tau_Y^{*-1}}{\tau_Y^{-1} + \tau_Y^{*-1}}$$

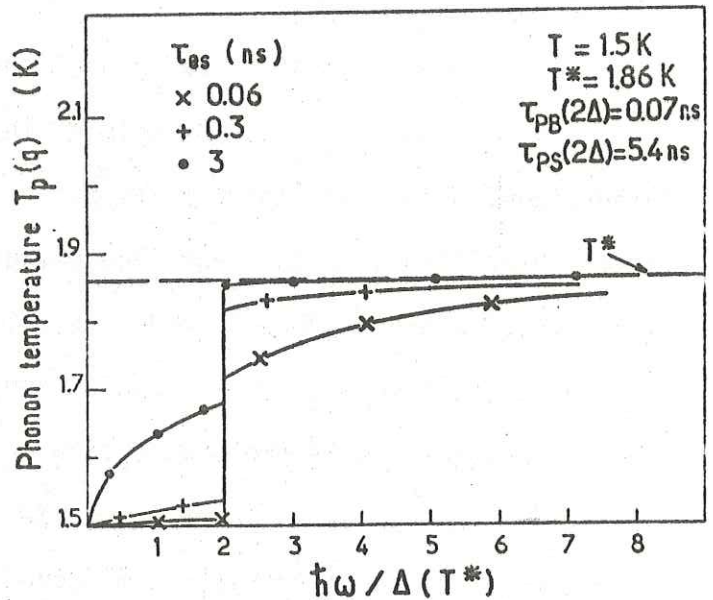
On peut définir, pour chaque mode, une température d'occupation $T_p(q)$ par $n(\Omega) = (1 - \exp \frac{\Omega}{T_p(q)})^{-1}$. La Figure 6 donne un exemple de variation de $T_p(q)$ pour diverses valeurs de τ_Y . Il y a une discontinuité de température pour $\Omega = 2\Delta$. Au-dessous, les phonons sont préférentiellement couplés au thermostat à T_0 ($\tau_Y < \tau_{qp}^*$) et au-dessus, le couplage se fait avec les quasiparticules à la température T^* ($\tau_{PB}^* < \tau_Y$).

Lorsque la condition $\tau_{PB}^* \ll \tau_Y \ll \tau_{qp}^*$ est remplie, les températures de phonons sont exactement T_0 et T^* . Cette distribution a été proposée pour la première fois par Parker (1975) et se résume à :

$$n(\Omega) = \begin{cases} n(\Omega, T_0) & \text{pour } \Omega < 2\Delta \\ n(\Omega, T^*) & \text{pour } \Omega > 2\Delta \end{cases}$$

$$f(E) = f(E, T^*)$$

Fig. 6 : Température des phonons en fonction de l'énergie ($\Omega = \hbar\omega$) pour plusieurs valeurs du temps de fuite ($\tau_{es} = \tau_Y$) les temps de vie de phonons τ_{PB} et τ_{PS} ($= \tau_{qp}$) sont calculés ici pour une distribution de quasiparticules $f(E, T^*)$ (N. Perrin, 1980).



3. Système faiblement couplé au thermostat - Supraconducteur massif. La configuration "en volume" réduit l'effet des parois en proportion des dimensions de l'échantillon ($\tau_Y \rightarrow \infty$). Cet effet s'élimine complètement dans les expériences de temps de vol. A basse température et pourvu que τ_{qp} soit grand, les liaisons entre les différents sous-systèmes sont levées : les phonons de basse énergie d'une part, les phonons $\Omega > 2\Delta$ et les quasiparticules d'autre part, se découplent du thermostat.

C'est dans ce contexte que nous étudierons la propagation balistique des phonons et la propagation du système quasiparticules + phonons 2Δ .

F. METHODES D'EXCITATION

Il est en principe possible de perturber de façon sélective les excitations du supraconducteur, par exemple en injectant des phonons à travers un diélectrique, ou des quasiparticules par effet tunnel. On peut également irradier l'échantillon avec une onde électromagnétique. Ces différentes méthodes ont été mises à profit dans l'étude des films minces hors d'équilibre (Langenberg 1975, Chang et Scalapino, 1977). Seules deux d'entre elles, l'irradiation par phonons thermiques et la photoexcitation ont été appliquées aux supraconducteurs massifs. Nous en donnerons le principe. Nous dirons quelques mots également de l'effet tunnel et de l'irradiation microonde, méthodes potentiellement intéressantes car beaucoup plus sélectives, mais encore difficiles à exploiter dans notre contexte.

1. Phonons thermiques

Les phonons sont produits dans une couche métallique évaporée (émetteur de chaleur) et sont transmis dans le supraconducteur à travers une couche isolante. Il n'y a pas d'injection de quasiparticules et le taux de production de phonons est déterminé par le spectre d'émission de la couche métallique. Selon toute vraisemblance, celui-ci s'étend largement de part et d'autre de 2Δ . Le modèle le plus courant est celui du rayonnement du corps noir (Weis, 1972). Il donne un spectre de Planck ayant un maximum $\Omega = 2.8 k_B T_e$ proportionnel à T_e , température effective de l'émetteur que l'on déduit généralement de la puissance dissipée dans la couche. En changeant cette puissance, on peut en principe injecter sélectivement les phonons au-dessus et au-dessous de 2Δ . Nous verrons qu'en pratique, ce n'est pas si simple.

2. Photo-excitation

Les photons optiques ayant des énergies largement supérieures au gap, l'irradiation lumineuse a pour effet d'exciter les électrons loin dans la bande d'électrons libres. Pour la raie verte du laser Ar^+ (5145 Å) l'énergie d'un

photon est de 2.41 eV soit environ 2000 fois le gap de l'étain. Le processus selon lequel un électron excité se dégrade en excitations de basse énergie (phonons et quasiparticules d'énergie $\sim \Delta$) peut se décrire de la façon suivante (Chang et Scalapino, 1977) : l'électron excité partage d'abord son énergie avec les autres électrons via l'interaction de Coulomb (taux électron-électron $\tau_{ee}^{-1} \sim E^2/hE_F$). Après quelques collisions, son énergie est suffisamment basse ($E < \sqrt{E_F \Omega_D}$) pour que les collisions avec les phonons deviennent dominantes (taux électron-phonon $\tau_{e-p}^{-1} \sim \Omega_D/\hbar$ pour $E > \Omega_D$ et $\sim E^3$ pour $E \ll \Omega_D$). La relaxation se fait alors par émission de phonons, lesquels peuvent soit créer de nouvelles quasiparticules par dissociation de paires (si $\Omega > 2\Delta$), soit s'échapper librement dans le supraconducteur ($\Omega < 2\Delta$). On assiste ainsi, par l'intermédiaire des phonons, à une redistribution de l'énergie de l'électron initialement excité, au profit d'un grand nombre de quasiparticules et de phonons de basse énergie. Cette cascade est très rapide et se produit probablement en quelques picosecondes. Il est donc raisonnable d'ignorer le détail des mécanismes gouvernant cette première phase de la photoexcitation et de la remplacer par un processus équivalent de "pseudo-injection" d'excitations de basse énergie

Chang et Scalapino supposent que cette pseudoinjection est dominée par les phonons, ce qu'ils justifient par l'argument suivant : les phonons mis en jeu dans la désexcitation des "électrons chauds" créent, par dissociation de paires, beaucoup plus de quasiparticules que celles directement émises par l'absorption des photons. Celles-ci pourront donc être négligées et l'on aura, comme processus équivalent à la photoexcitation, une émission de phonons de relaxation par un gaz d'"électrons chauds". Si la température caractéristique de ce gaz est grande devant Δ/k_B , ce que supposent Chang et Scalapino, la densité des phonons émis est uniforme en énergie ($n(\Omega) = \text{constante}$).

Mentionnons également le modèle de température électronique (N. Perrin 1979) qui semble très différent au premier abord puisqu'il ignore l'injection de phonons, mais qui conduit à des distributions tout-à-fait similaires.

3. Autres méthodes

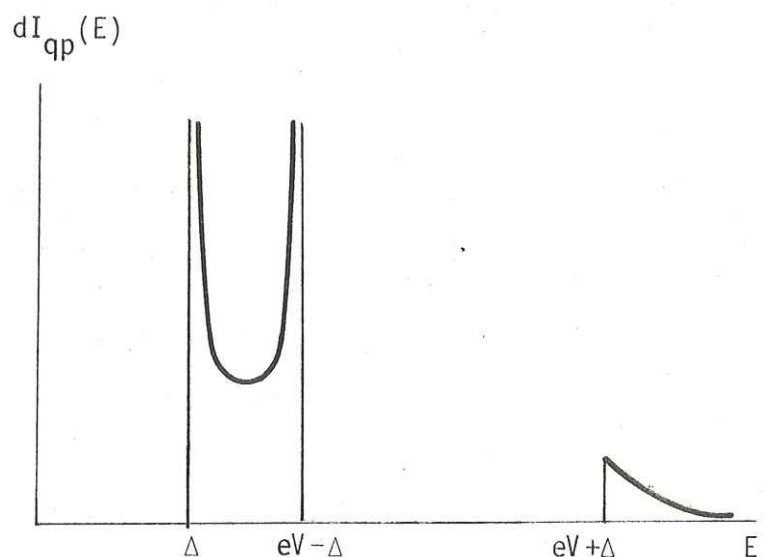
L'injection de quasiparticules peut se faire de manière contrôlée par effet tunnel : la jonction tunnel est formée entre l'échantillon et une contre-électrode évaporée (jonction symétrique supraconducteur oxyde-supraconducteur). Pour une tension de polarisation $eV > 2\Delta$, le courant d'injection de quasiparticules dans l'intervalle d'énergie dE est donné par l'expression usuelle du courant tunnel :

$$(31) \quad dI_{qp}(E) = \frac{e(E)dE}{eR_N} \left\{ \begin{aligned} &\rho(eV-E) [1-f(eV-E)-f(E)] \\ &+ \rho(E-eV) [f(E-eV)-f(E)] \\ &- \rho(E+eV) [f(E)-f(E+eV)] \end{aligned} \right\}$$

R_N est la résistance normale de la jonction par unité de surface et e la charge de l'électron.

Les facteurs de population sont peu importants à basse température. La distribution émise se réduit donc au produit des densités d'états $\rho(E)\rho(eV-E)$ que l'on voit représenté sur la Fig.7 .

Fig.7 : Distribution schématique des quasiparticules injectées par effet tunnel dans une jonction symétrique). Les 2 pics principaux sont dûs aux excitations induites par le voltage appliqué ($eV > 2\Delta$). Le pic beaucoup plus petit à $eV + \Delta$ provient des quasiparticules thermiques.



C'est donc une distribution extrêmement pointue et qui tend vers une fonction δ lorsque $eV \rightarrow 2\Delta$.

Du point de vue expérimental, ce procédé est extrêmement délicat. Les flux de quasiparticules créés sont très faibles : un courant tunnel typique de $1A/mm^2$ représente une puissance de l'ordre du mW/mm^2 , c'est-à-dire une quantité injectée d'environ 10^{11} particules (10^{-8} coulomb) par impulsion de 10 nsec.

Un même type d'injection s'obtient par irradiation microonde (photons monochromatiques d'énergie $\Omega \sim 2\Delta$). Il n'y a pas de couplage direct photon-phonon mais seulement une interaction entre l'onde et les quasiparticules qui se fait sur une profondeur de pénétration de quelques centaines d'ångströms. Un photon peut casser une paire de Cooper en créant deux quasiparticules au voisinage de $E = \Omega/2$, ($\Omega > 2\Delta$), ou transférer des excitations du bas de bande à un niveau excité $\sim \Omega + \Delta$. Le taux d'injection des quasiparticules contient les mêmes termes que le courant tunnel mais dépend en plus des facteurs de cohérence (Ivlev et al. 1973):

$$\begin{aligned}
 dI_{qp}(E) = A \frac{P(\Omega)}{\Omega^2} \rho(E) dE & \left\{ \rho(\Omega-E) (1-f(\Omega-E)-f(E)) \left(1 - \frac{\Delta^2}{E(\Omega-E)}\right) \right. \\
 (32) \quad & + \rho(E-\Omega) (f(E-\Omega) - f(E)) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(E-\Omega)}\right) \\
 & \left. - \rho(E+\Omega) (f(E)-f(E+\Omega)) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right) \right\}
 \end{aligned}$$

$P(\Omega)$ est la puissance micro - onde, et le coefficient d'absorption dans l'état normal. A est en général donné par le rapport :

$$A = 4 \operatorname{Re} Z_n / Z_0$$

où Z_0 est l'impédance du vide ($Z_0 = (\frac{\mu_0}{\epsilon_0})^{1/2} = 377 \Omega$) et $\operatorname{Re} Z_n$ la partie réelle de l'impédance de surface. Celle-ci est toujours très faible devant Z_0 et vaut:

$$\operatorname{Re} Z_n = (\frac{\mu_0 \omega}{2\sigma})^{1/2}$$

σ est soit la conductivité statique (σ_0) dans le régime "local" ($\ell_i < \delta$), soit la conductivité apparente ($\sigma = \frac{4\pi}{\sqrt{3}} \sigma_0 \delta(\omega, \sigma) / \ell_i$) dans le régime d'effet de peau anormal ($\ell_i > \delta$)

A peut être facilement augmenté en imposant des réflexions multiples sur l'échantillon.

La distribution émise est de forme voisine de la distribution de la Fig. 7 avec la correspondance $eV \leftrightarrow \Omega$ avec cependant la différence importante que les facteurs de cohérence (interaction B.C.S. de type II) tendent à inhiber la création de quasiparticules par cassure de paires et au contraire à renforcer les transitions du type $E \rightarrow \Omega + E$. Ceci a pour effet de réduire les deux pics principaux (Δ et $\Omega - \Delta$) et de renforcer le pic satellite $E = \Delta + \Omega$.

L'irradiation microonde est donc peu efficace pour créer des quasiparticules au voisinage immédiat du bas de bande $E \approx \Delta$. Le taux d'injection limite pour

$\Omega \approx 2\Delta$ est une fonction δ avec un coefficient tendant vers 0 :

$$(33) \quad dI_{qp}(E) \approx A \frac{P(\Omega)}{\Omega^2} \frac{\pi}{2} (\Omega - 2\Delta) \delta(E) dE \quad (\Omega \rightarrow 2\Delta)$$

C'est par contre un moyen de pomper les excitations du supraconducteur vers des niveaux de haute énergie.

Cette propriété est intéressante puisqu'elle conduit à l'accroissement du gap supraconducteur (observé dans des films minces soumis à un rayonnement électromagnétique $\Omega < 2\Delta$ (voir par exemple l'article de revue de Langenberg, 1975).

Ce sont en effet les quasiparticules de basse énergie ($E \approx \Delta$) qui, en inhibant les corrélations de paires, causent l'abaissement du gap à température finie. Une fois portées à plus haute énergie ($\Delta + \Omega$) elles ont une plus grande probabilité de se recombiner (probabilité proportionnelle à la densité d'états des phonons de recombinaison) et donc deviennent moins efficaces.

G. CONDUCTIVITE THERMIQUE ET IMPULSIONS DE CHALEUR

La plupart des données sur le transport des excitations thermiques dans un métal nous viennent de l'étude de la conduction de la chaleur. Dans une expérience de conductivité thermique, l'échantillon est supposé posséder en tout point une température bien définie, ce qui signifie que les propriétés observées sont celles du système en quasi-équilibre thermique. Si les libres parcours moyens sont trop grands, on assure la thermalisation en multipliant les collisions sur les parois (géométrie allongée et surface rugueuse).

Chaque type d'excitation participe à la conductivité thermique par une contribution $\kappa = D.C$, où C est la chaleur spécifique et $D = \frac{1}{3} \bar{v}^2 \tau$ la constante de diffusion (\bar{v}^2 vitesse quadratique moyenne des porteurs et τ temps de collision). Ainsi, dans un métal pur, κ est en première approximation la somme des conductivités d'électrons κ_e et de phonons κ_p , chacune étant limitée à la fois

par les collisions électron-phonon (κ_e^{e-p} et κ_φ^{p-e} respectivement) :

$$(34) \quad \kappa = \kappa_e + \kappa_\varphi = \left(\frac{1}{\kappa_e^i} + \frac{1}{\kappa_e^{e-p}} \right)^{-1} + \left(\frac{1}{\kappa_\varphi^i} + \frac{1}{\kappa_\varphi^{p-e}} \right)^{-1}$$

Dans l'état normal, κ_e et κ_φ sont données respectivement par $\kappa_e = C_e^N / (aT^3 + b)$ et $\kappa_\varphi = C_\varphi / (dT + e)$. Les numérateurs sont les chaleurs spécifiques des électrons ($C_e^N = \gamma T$) et des phonons ($C_\varphi = AT^3$). Les dénominateurs contiennent des termes constants (b et e) venant de κ_e^i et κ_φ^i et des termes dépendant de la température, aT^3 et dT , qui reflètent la variation des taux de collision électron-phonon. A basse température, κ_φ^{p-e} est négligeable, car les libres parcours de phonons sont très courts ; la conductivité thermique se réduit à la contribution des électrons.

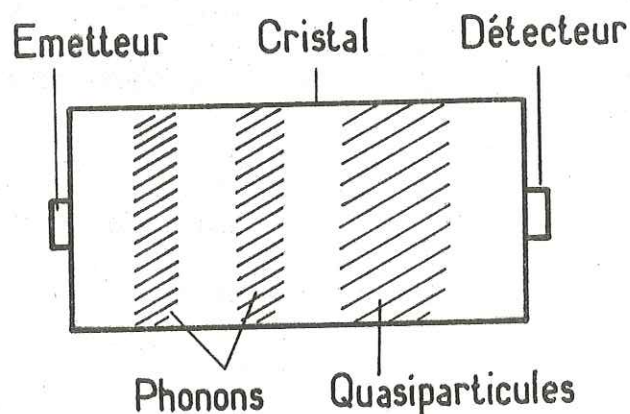
Au-dessous de T_c , la conductivité des électrons décroît car les électrons appariés ne transportent pas d'énergie. La chaleur spécifique électronique s'effondre ($\sim \exp - \frac{\Delta}{k_B T}$) tandis que les collisions e-p se raréfient. On passe progressivement à une conduction par les phonons, avec pour limite le régime de Casimir $\kappa_\varphi^i \sim T^3$ pour les phonons parfaitement balistiques, régime bien observé expérimentalement. Les régimes intermédiaires où κ_e et κ_φ interviennent simultanément sont plus difficiles à étudier car les expériences ne permettent pas de reconnaître les porteurs.

On voit ici l'apport possible des expériences d'impulsions de chaleur qui mettent en évidence les vitesses de transport. La configuration d'une telle expérience comporte trois éléments : l'émetteur, l'échantillon, et le détecteur. Emetteur et détecteur sont, dans la plupart des cas, des films minces évaporés : film métallique chauffé par effet Joule pour l'émetteur et bolomètre supraconducteur pour le détecteur. Cette méthode a surtout été appliquée à l'étude des phonons thermiques dans les isolants (hélium liquide ou monocristaux diélectriques) ou les semiconducteurs. Elle permet d'analyser séparément les divers modes de phonons balistiques selon leur direction de propagation et leur

temps de vol et peut fournir des informations détaillées sur les fréquences si on emploie des transducteurs quantiques (Eisenmenger, 1976).

Bien que peu exploitée jusqu'à présent, l'extension aux métaux supraconducteurs nous a paru s'imposer, puisque les temps de relaxation des porteurs peuvent être supérieurs au temps de transmission de l'impulsion de chaleur. On verra qu'à très basse température ($T \ll T_c$) la chaleur est transportée séparément par les phonons et par les quasiparticules.

Fig. 8 : Principe d'une expérience d'impulsion de chaleur. Les différents paquets de chaleur s'identifient par leur temps de vol.



La condition (libre parcours moyen $>$ dimensions de l'échantillon) n'est généralement réalisée que pour les phonons, les libres parcours électroniques étant limités par les collisions électron-impureté. En l'absence de couplage e-p, il y aura donc propagation balistique des phonons et transport diffusif des quasiparticules. La description du transport de chaleur, en terme de conductivité thermique n'a donc plus de sens ici, il faut plutôt la regarder comme une propagation des excitations élémentaires. Ceci se confirmera par l'importance des méthodes d'excitation et de détection dans les résultats observés à basse température (voir Chap. V).

A température plus élevée, au fur et à mesure que le couplage e-p apparaît, phonons et quasiparticules sont absorbés pour se "fondre" finalement en une impulsion de chaleur unique caractéristique du système e-p thermalisé et décrite par l'équation de la chaleur :

$$(35) (\kappa_e + \kappa_q) \nabla^2 T - (C_e + C_q) \frac{\partial T}{\partial t} = \delta(r, t)$$

Dans la région de températures intermédiaires, différents mécanismes de propagation peuvent apparaître suivant la pureté du matériau et la force du couplage. Ainsi, seront mises en évidence :

- diffusion des phonons par les quasiparticules dans Nb impur (Appendice.)
- diffusion couplée des quasiparticules et des phonons dans le plomb (Narayanamurti et al. 1978 , et chap. IV)
- propagation mixte phonons balistiques + diffusion de quasiparticules dans Sn (voir chap. IV)

Il sera nécessaire dans chaque cas de considérer les équations de transport couplées des électrons et des phonons.

CHAPITRE II

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

La configuration expérimentale propre à notre étude est celle des expériences d'impulsions de chaleur dans les solides. La plupart des outils expérimentaux sont empruntés à cette technique. Ils ont déjà été exposés de façon détaillée (Thèse d'Ingénieur de D. Huet 1972, D. Huet et coll. 1976) et nous ne les décrirons pas ici. Nous discuterons seulement les éléments propres à notre montage expérimental et les étapes essentielles des expériences.

A) LES ECHANTILLONS

Presque toutes les expériences ont été effectuées sur l'étain. L'étain est un élément de la quatrième colonne ($Z = 50$), $A = 118,69$, valences 2 et 4) qui peut cristalliser sous deux formes allotropiques : l'étain gris (α -Sn) qui est semiconducteur et l'étain blanc (β -Sn) métallique. L'étain blanc, qui nous intéresse ici, cristallise dans le système tétragonal. Matériau à bas point de fusion (232°C) il recristallise très facilement et possède l'intéressante propriété de se recuire dès la température ordinaire. Ceci évite la dégradation progressive des cristaux qui sont soumis généralement à des contraintes sévères comme le polissage, les collages, les cycles thermiques, etc...

Les propriétés supraconductrices de Sn apparaissent au-dessous de $T_c = 3.72\text{ K}$. A température nulle, le champ magnétique critique est $H_c = 306\text{ Oe}$ en géométrie cylindrique allongée.

Les monocristaux utilisés proviennent de Metal Research Ltd et sont de pureté 99,999 %. Pour déterminer le rapport de résistivité résiduelle entre

300 K et 4.2 K, on utilise la méthode des courants de Foucault qui consiste à mesurer δ profondeur de pénétration du champ magnétique. La résistivité ρ est ensuite déduite de δ par la relation bien connue $\delta^2 = 2\rho/\mu_0\omega$ (ω : fréquence angulaire du champ magnétique et μ_0 perméabilité magnétique du vide). Le rapport de résistivité est de l'ordre de 10^4 à 4,2 K, ce qui implique un libre parcours moyen des électrons $\ell_i \sim 0.15$ mm ou une durée de vie $\tau_i = 2.10^{-10}$ sec sur les imperfections du cristal.

La préparation proprement dite des échantillons se fait en plusieurs étapes. Après orientation par diffraction de rayons X, les échantillons sont découpés par étincelage sous forme de pastilles de quelques millimètres d'épaisseur et de surface voisine du centimètre carré. Le polissage se fait dans une machine à vibration (Wirtz), les échantillons se déplaçant sous leur propre poids sur un tissu imbibé d'une suspension de grains d'alumine. Cette opération est très longue (plusieurs semaines pour Sn, plusieurs mois pour Nb) car on utilise directement le grain le plus fin (alumine 12h, $1\mu\text{m}$). Mais cette précaution s'est révélée indispensable, spécialement pour le Niobium (voir l'article en Appendice). Les échantillons sont ensuite rincés à l'eau désionisée (pureté de l'eau tridistillée) dans un bac à ultrasons puis dégraissée dans la vapeur d'alcool isopropylique. Immédiatement après le nettoyage, l'échantillon est fixé soûplement à l'aide de vernis GE 7031 sur un support en cuivre ayant les dimensions des lames standard de microscope ($20 \times 30 \text{ mm}^2$) et percé pour recevoir l'échantillon en son centre. Il ne sera plus manipulé directement au cours des opérations ultérieures : évaporation des couches minces, mise en place des contacts électriques, montage dans la cellule expérimentale.

Il s'est révélé nécessaire d'effectuer des séries d'expériences sur un même échantillon, soit pour étudier comparativement différents émetteurs ou détecteurs, soit plus simplement pour remplacer une jonction tunnel de qualité

insuffisante. Il faut donc recommencer le cycle de préparation à partir du polissage. Celui-ci suffit pour ôter les couches minces antérieures. On peut aussi décoller celles-ci chimiquement (HF en solution à 5% décolle les films de SiO en quelques secondes).

Les autres matériaux que nous avons testés au cours de cette étude (Nb, Al, Pb, Ta) sont préparés de la même manière.

B) LES COUCHES MINCES EVAPOREES.

Pour les émetteurs et détecteurs "standards" de phonons, nous nous restreindrons ici aux données essentielles sur la préparation et les paramètres caractéristiques. Seuls seront développés de façon un peu détaillée les procédés de fabrication des jonctions tunnel d'étain dans la configuration adaptée à la détection des quasiparticules. Pour une description plus complète des transducteurs de phonons, nous renvoyons à la thèse de D. Huet (1978).

Les émetteurs de phonons thermiques sont des films de cuivre chauffés soit par effet Joule (serpentins d'épaisseur 300 \AA , d'aire 1 mm^2 , et d'impédance $\sim 50 \Omega$ à basse température) - soit par une impulsion laser. On optimise alors l'absorption de la lumière en les recouvrant d'une couche de Germanium d'épaisseur 320 \AA , égale au quart de la longueur d'onde laser (5145 \AA). Cette couche Ge-Cu est un bon convertisseur de photons en phonons thermiques. Elle absorbe environ 50 % de la lumière incidente et n'en transmet qu'une fraction inférieure à 1 %. La surface effective d'émission dépend de la largeur du faisceau lumineux. Elle a varié entre 0.02 et 1 mm^2 selon les expériences.

Dans les expériences de photoexcitation proprement dite, la lumière est envoyée directement sur la surface polie du cristal. Malgré la réflexion métallique, 20 % environ de la lumière est absorbée dans l'étain.

Les bolomètres supraconducteurs les plus couramment utilisés sont en Aluminium de faible épaisseur ($< 300 \text{ \AA}$). Leur température et champ critiques sont fortement augmentés par rapport à l'aluminium massif ($T_c = 1.14 \text{ K}$ et $H_c = 80 \text{ Oe}$) par l'effet de taille. Ils peuvent ainsi fonctionner sous plusieurs centaines d'Oe, ce qui est utile pour les expériences au voisinage du champ critique de l'étain. Enfin, on peut les utiliser à température variable en ajustant le courant de polarisation I_p (0.1-1mA). L'Aluminium granulaire (Al.gr) possède les mêmes propriétés d'élévation de T_c et H_c (F.R. Ladan) Le tableau ci-dessous résume les caractéristiques des bolomètres supraconducteurs utilisés dans ce travail.

Matériau	Zn	Al	Al.gr.	In	Sn	Pb
Epaisseur (Å)	2000	< 300	1000	2000	2000	2000
Evaporation	four à chicane (Ta)	filament W	Four Al_2O_3	Nacelle Ta	Nacelle Ta	Nacelle Ta
T fonctionnement	0.8 K	0.6-1.8 selon I_p	2.1-2.3.	3.65	3.72	7.2
H_c (Oe)	40	< 2000	< 10000		400	900

Ces bolomètres ont des temps de réponse typiques de 10^{-8} sec et peuvent détecter des puissances de l'ordre de 1 W/mm^2 (Maneval, 1973). La sensibilité, exprimée par le coefficient $\frac{1}{R} \frac{dR}{dT}$ varie de 10 à 100 K^{-1} selon le matériau et selon l'homogénéité de la couche.

Le choix des matériaux pour la fabrication des jonctions tunnel est fixé par la fréquence de détection désirée : Al pur (80 GHz) et surtout Al granulaire (150 GHz) et Sn (280 GHz). La barrière tunnel est formée par oxydation de la première électrode dans une atmosphère contrôlée d'oxygène (10^{-1} Torr pendant 5 mn pour Al ; 600 Torr et 16 h interrompues par plusieurs cycles de pompage pour Sn). Les électrodes sont des bandes perpendiculaires de largeur 0.26 mm et d'épaisseur 1000 Å pour Al^{gr}, 2000 Å pour Sn. La surface effective de la jonction est 0.07 mm².

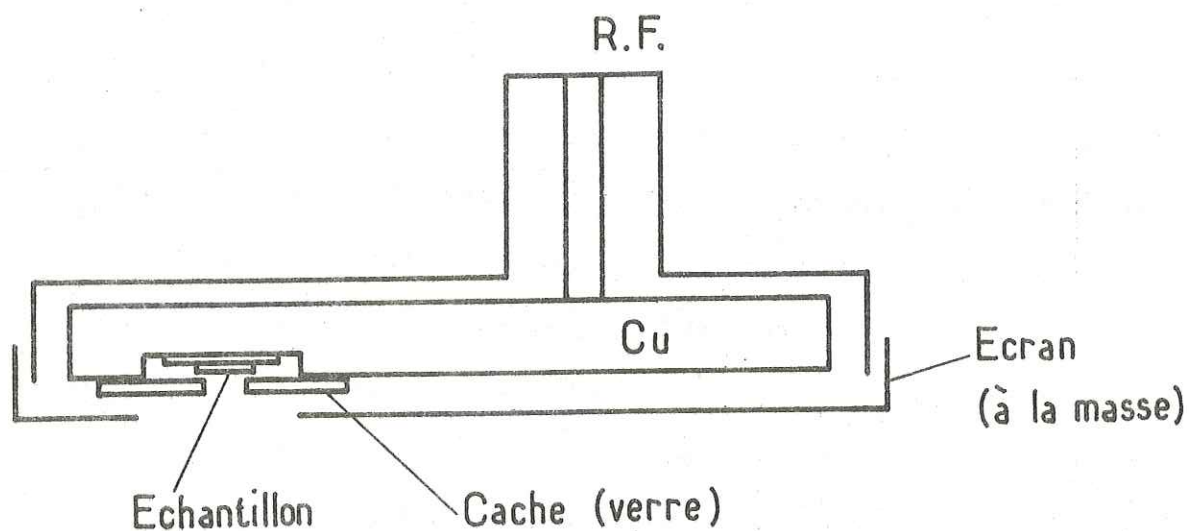
Ces différentes couches sont électriquement isolées du substrat métallique par un film évaporé de SiO (typiquement 0,5 µm d'épaisseur). Si, au lieu de phonons, on souhaite détecter des quasiparticules

il convient d'utiliser une configuration sans isolant dans laquelle le cristal forme une électrode de la jonction. Cette structure, simple au premier abord, s'est révélée difficile à préparer. Il est exclu d'utiliser comme barrière tunnel l'oxyde naturel qui recouvre les échantillons car il est de très mauvaise qualité. Nous avons tenté deux procédés. Le premier (a) consiste à oxyder la surface du cristal, fraîchement nettoyé par bombardement ionique et le second (b) utilise une première électrode d'étain évaporée que l'on oxyde ensuite avant le dépôt de la seconde électrode. La Figure 1 illustre les différentes étapes de chaque méthode.

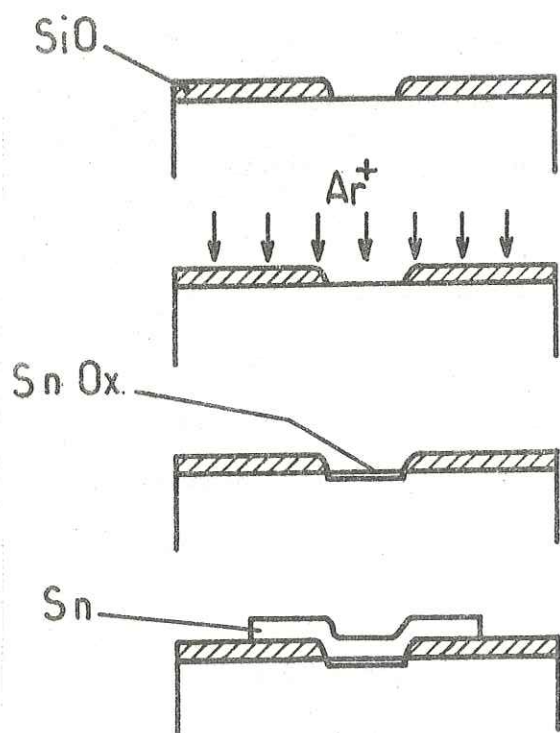
Procédé a)

Après un premier dépôt de 3000 Å de SiO (1a) laissant nue une bande de 0.5 mm de largeur, on place l'échantillon dans le bâti de pulvérisation cathodique (Alcatel R.F. Diode, SM 450). La disposition de l'échantillon sur la cathode est schématisée sur la Figure 1. La zone de plasma qui, en général couvre toute la cathode, est ramenée à un diamètre d'environ 70 mm

PORTE-SUBSTRAT



Procédé - a



Procédé - b

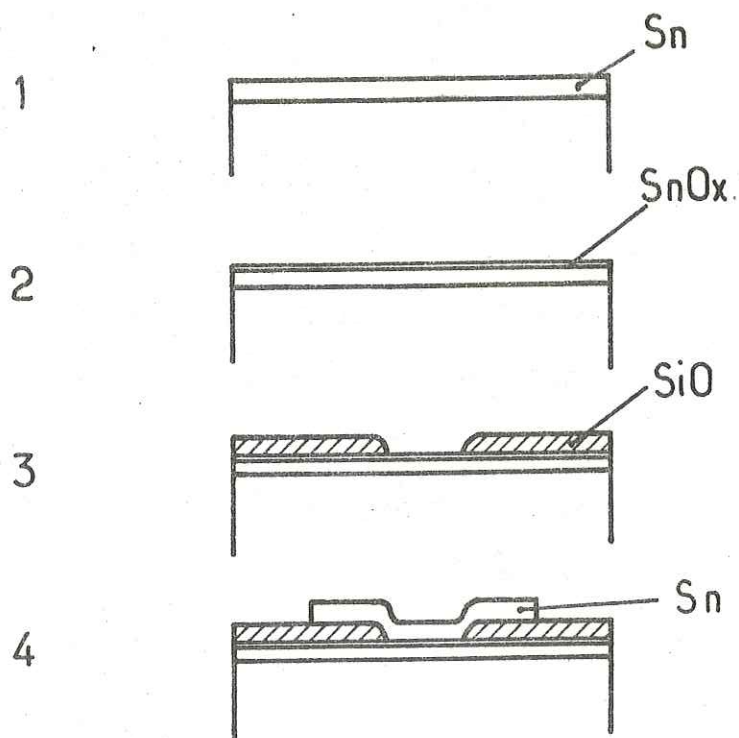


Fig. 1 : En haut : schéma du porte-substrat radiofréquence utilisé pour le décapage ionique du cristal d'étain. Au-dessus : principales étapes de la formation de la jonction tunnel (jonction directe cristal Sn-oxyde-film Sn).

par un écran en acier inoxydable relié à la masse et maintenu à quelques mm de la cathode (cette distance doit être inférieure à l'épaisseur de la zone sombre de Crooke qui est de l'ordre de 10 mm). On protège l'ensemble des éléments de fixation de l'échantillon (vis, supports ...) du faisceau d'ions à l'aide d'un cache en verre ou en cuivre étamé fixé sur le porte-substrat par un flasque en téflon et muni d'une petite ouverture en regard de l'échantillon. On limite ainsi la contamination par rétrodiffusion des particules éjectées du support et des parties voisines. Nous nous sommes placés dans les conditions optimales pour un décapage ionique "propre" (Kominiak et coll. 1976) :

- Pression résiduelle $< 10^{-6}$ torr avant introduction de l'Argon.
- Pression d'Argon $\sim 5 \cdot 10^{-4}$ torr
- Tension d'accélération : - 2 kV
- Puissance RF incidente ~ 5 W/cm²
- Puissance réfléchie minimum (on recueille quelques W).

Le choix de ces paramètres assure un taux d'arrachage de quelques Å par seconde. Le plasma est maintenu pendant environ 5 mn. (Etape 2a).

Pour former la barrière tunnel (3a) nous avons employé une oxydation par décharge, plus rapide et plus contrôlable que l'oxydation naturelle sous atmosphère d'oxygène. La décharge s'effectue entre une électrode d'aluminium (cathode) disposée à 20 cm de l'échantillon et les parois de l'enceinte à vide. La pression d'oxygène est 0.25 torr, la tension de décharge 1kV et le courant de l'ordre de 50 mA. L'alimentation haute tension (1.2 kV, 100 mA) a été fabriquée au laboratoire par Nick Lockerbie. L'échantillon est ensuite transféré dans un évaporateur pour recevoir la seconde couche d'étain (4a).

Procédé b)

Ce procédé conduit à une structure moins idéale puisqu'il met en jeu une interface et une couche évaporée supplémentaire. Néanmoins, il possède l'avantage d'une plus grande fiabilité car les différentes étapes peuvent être exécutées dans un même évaporateur sans rupture du vide. Une première électrode d'étain est évaporée rapidement (100 Å/sec) sur toute la surface de l'échantillon (1b). On l'oxyde (2b) selon la méthode décrite ci-dessus, puis on évapore la couche de SiO qui définira la géométrie de la jonction (3b). Les qualités mécaniques de SiO dépendent des conditions d'évaporation et plus précisément du rapport Pression/Taux d'évaporation, les contraintes étant minimales pour une valeur de $3.5 \times 10^{-7} \text{ torr} \cdot \text{sec}/\text{Å}$ (D. Geistenberg, 1970). SiO est généralement déposé sous $7 \times 10^{-7} \text{ torr}$ à un taux de 20 Å/sec . Il est important d'assurer un bon contact entre le masque et l'échantillon, il est en effet apparu qu'une zone de pénombre pouvait être à l'origine de courants de fuite détériorant la qualité des jonctions. Finalement, la seconde électrode est déposée à vitesse lente $< 30 \text{ Å/sec}$ (4b).

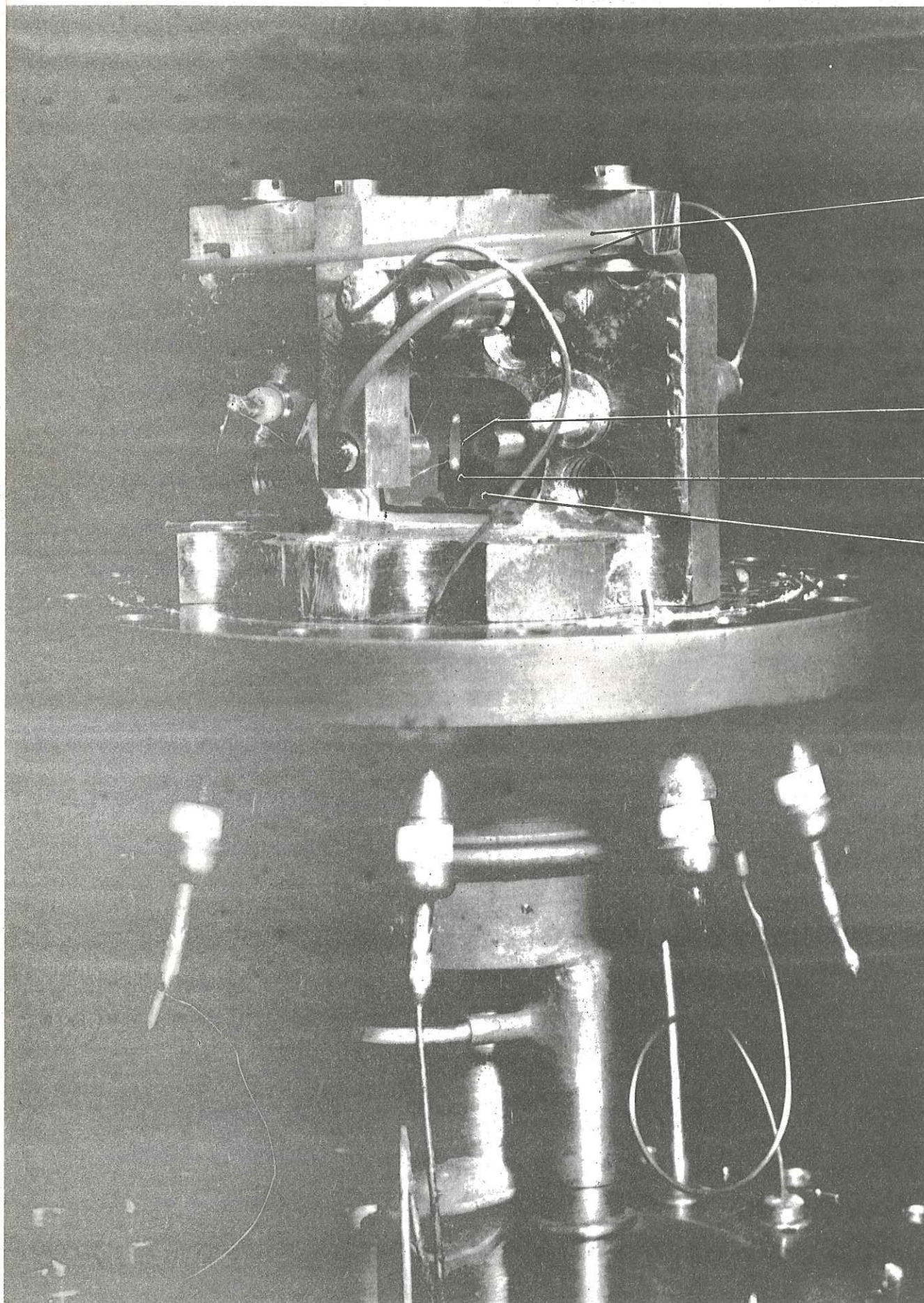
Un grand nombre de tests ont été effectués. De façon générale, les diodes fabriquées selon le procédé a) montrent une structure bien marquée dans le courant tunnel à $eV = 2\Delta$, mais aussi un fort courant de fuite non thermique limitant le facteur de qualité (saut relatif du courant tunnel à $eV = 2\Delta$) à 4. L'origine de ce courant tient probablement à la mauvaise qualité de l'oxyde formé sur la surface du cristal. Cet oxyde peut avoir une structure et des propriétés électriques très différentes de celles de l'oxyde formé sur une couche évaporée. Il peut également se produire des craquelures dues aux contraintes thermiques lors de la mise en froid de l'échantillon. La dilatation thermique

de l'étain est en effet très anisotrope et peut être très différente de celles des couches évaporées (Sn et SiO) déposées sur l'oxyde. En ce qui concerne la contamination de la surface par le bombardement ionique, il semble que la quantité d'atomes rétrodiffusés ait été bien minimisée par l'optimisation de la pression de travail et de la géométrie du porte-substrat. Par contre, un paramètre plus difficile à contrôler est la quantité d'atomes d'argon implantés. Une analyse plus fine n'est possible qu'en contrôlant les profils de concentration des atomes étrangers à l'étain. Nous avons préféré exploiter les résultats meilleurs obtenus à l'aide du procédé b). L'utilisation des diodes tunnel comme détecteurs nécessite en effet des jonctions de très haute qualité et les diodes b) se sont révélées suffisantes (facteur de qualité supérieur à 100).

C) MONTAGE EXPERIMENTAL

1. Le cryostat

Une grande partie des expériences nécessite le refroidissement de l'échantillon à des températures inférieures à 1 K. Nous utilisons un réfrigérateur à ^3He construit à l'atelier de l'E.N.S. et permettant de travailler au voisinage de 0.5 K. La chambre d'expérience (diamètre 4 cm) est refroidie par contact thermique avec la cellule à ^3He (Figure 2). Le cryostat peut fonctionner en "monocoup" : la température minimum atteinte est de 0.43 K sans dissipation et de 0.5 K avec une dissipation de 1 mW. Le pompage se fait à l'aide d'une pompe mécanique de 30 m³/heure. La durée du cycle est limitée à quelques dizaines de minutes, temps nécessaire pour évaporer la totalité de l'hélium condensé ($\sim 8 \text{ cm}^3$ liquide). On préfère généralement le fonctionnement en "circulation". La cellule est alimentée continuellement en ^3He liquide à l'aide d'un gicleur (vis pointeau manipulée de l'extérieur). On peut travailler ainsi pendant plusieurs heures à température fixée (minimum $\sim 0.6 \text{ K}$) sans qu'il soit nécessaire de re-condenser l'hélium 3.



Fibres
optiques

Jonction

SiO

Echantillon

Les connections électriques entre l'échantillon et le plateau du cryostat sont assurées par des lignes coaxiales d'impédance 50Ω : câbles microaxiaux supraconducteurs (obtenus par indiage du conducteur extérieur en inox $\phi = 0,3 \text{ mm}$) dans la partie basse température et câbles subclic (cuivre $\phi = 2,8 \text{ mm}$) au-dessus. Le temps de montée de l'ensemble est inférieur à 1 nsec ; la liaison "optique" avec l'extérieur se fait à l'aide de fibres de verre placées dans un tube inox reliant la cellule expérimentale au plateau supérieur du cryostat. Le problème d'étanchéité est du fait simplifié car il ne se pose qu'au niveau du plateau où un collage à l'araldite ou dans certains cas un simple joint torique suffit.

Différents procédés sont utilisés pour mesurer la température. Durant la mise en froid, nous utilisons une sonde formée par la mise en série d'une résistance au carbone de $22 \Omega (1/8 \text{ W})$ et d'une thermosonde de platine (100Ω). La dépendance en température est non-monotone : décroissance entre 300 K et 30 K due à la résistance de platine puis croissance à très basse température. Cette résistance est mesurée en continu sous un courant de $1 \mu\text{A}$ (Figure 3). Elle est calibrée aux températures de l'hélium 3 par la mesure de la pression de vapeur saturante (jauge Kamerer EK2 $0,1 - 1 \text{ mm}$ et $1 - 100 \text{ mm}$). Une échelle commode de température parfois utilisée est fournie par la mesure du courant tunnel thermique d'une jonction tunnel (chap. III).

Il n'y a pas de régulation de température. On ajuste T en réduisant la vitesse de pompage (vanne d'étranglement) et éventuellement en ajustant la vanne pointead'injection d' ^3He liquide. La stabilité est de l'ordre de 10^{-3} K .

Enfin, l'échantillon est protégé du champ magnétique extérieur grâce à un blindage en μ -métal recuit entourant le cryostat. Si nécessaire, on

peut appliquer un champ de direction parallèle aux faces de l'échantillon à l'aide d'un solénoïde supraconducteur immergé dans le bain d'Hélium 4 du réfrigérateur. Cette bobine, construite par P. Letur fournit un champ magnétique de 650 œrstedts par Ampère au centre de la cellule.

2. Fibres optiques

La lumière servant à l'excitation optique de l'échantillon provient d'un laser à argon ionisé (Spectra Physics 265, 4 W continu) équipé d'un modulateur acousto-optique. Ce laser délivre des impulsions de l'ordre de 20 W avec des durées d'impulsion minimum de 20 nsec. Les fibres optiques servant à la transmission de la lumière doivent être de faible perte et fonctionner à basse température. Ceci exclut les fibres commerciales silice-silicone qui deviennent totalement absorbantes au dessous de 200 K. Nous avons testé plusieurs échantillons de fibres mis à notre disposition par différentes compagnies (CNET, CGE et Thomson-Câble). Les fibres verre-verre conviennent parfaitement. Dans la plupart des expériences, nous avons utilisé un couple de fibres multimodes, d'ouverture numérique 0.4 et de diamètre de coeur 65 μm . Ces fibres ont une atténuation de quelques dizaines de dB/km à 5145 Å donc négligeable pour les longueurs utiles (5 m). Le rayon de courbure minimum est en principe inférieur au centimètre. Il faut cependant éviter de trop les courber car bien avant la limite de rupture, on observe des instabilités du flux lumineux transmis. Côté échantillon, l'extrémité de la fibre est placée à 1 mm de la surface, et produit une tâche d'environ 0.4 mm de diamètre. L'autre côté de la fibre est amené, à l'aide de micromanipulateurs X-Y-Z au point de convergence du faisceau laser, focalisé par un objectif de microscope de grossissement 10.

Pour préparer les faces de la fibre, on présente son extrémité dans la flamme d'un briquet pour y induire des contraintes thermiques puis on la brise

Fig. 3 : Calibration de la
thermosonde basse température.
Résistance au carbone 1/8W.
Courant 1 μ A.

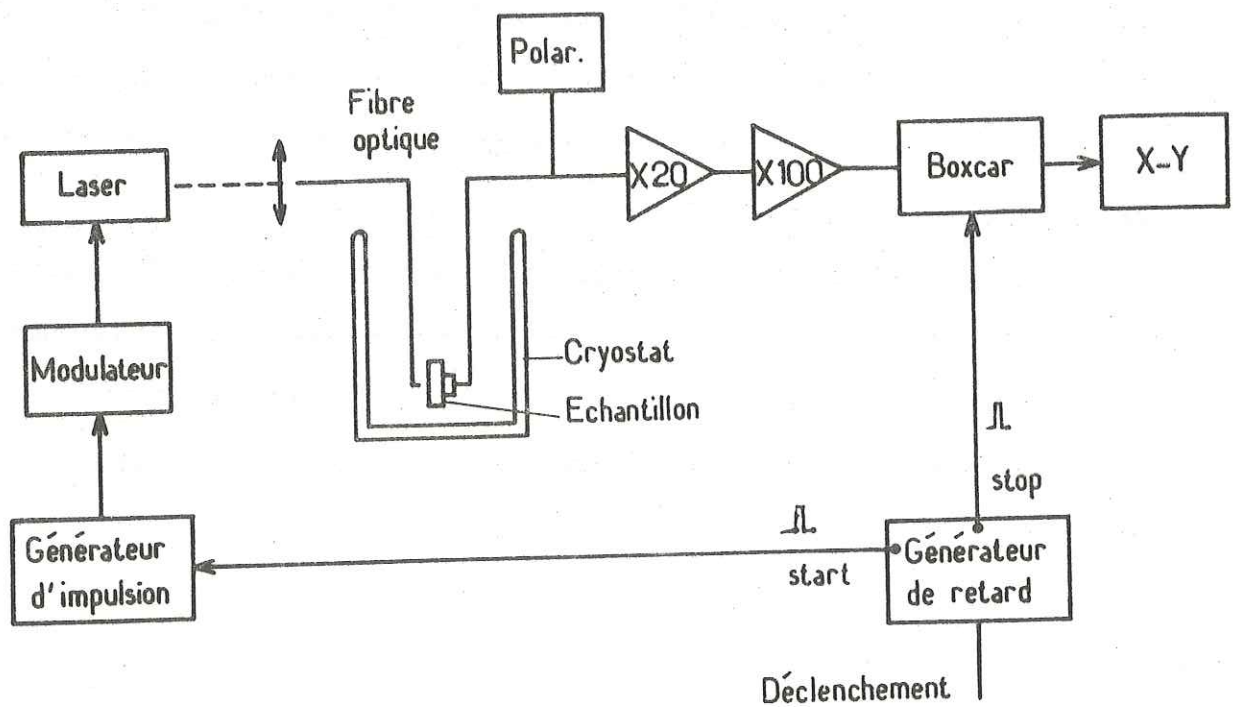
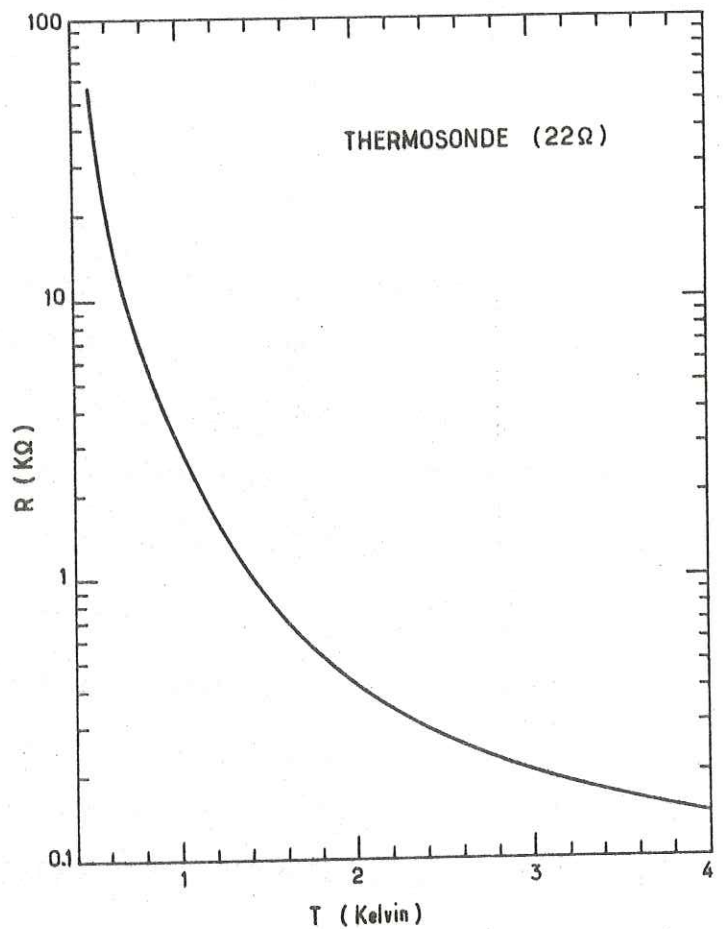


Fig. 4 : Schéma du circuit de mesure.

par un choc mécanique. La surface obtenue est plane et sans éclat, ce que l'on vérifie en observant la tâche lumineuse sur un écran.

Le facteur de transmission global du système optique - objectif + fibre optique refroidie à 77 K - mesuré à l'aide d'un wattmètre calibré (Scientech) est de l'ordre de 50 %.

3. Porte échantillon et dispositif de mesure

Une fois les couches minces déposées, le cristal d'étain, toujours tenu sur son support de cuivre est monté dans le porte-échantillon. Celui-ci est un bloc massif de cuivre électrolytique refroidi par contact thermique avec la cellule à Hélium trois . Les liaisons électriques entre câbles coaxiaux et couches minces sont faites par du fil fin de cuivre (1/10 mm) collé à l'aide de laque d'Argent. Cette opération nécessite le démontage du porte-échantillon qui, à cet effet est muni de connecteurs coaxiaux pour le raccordement au cryostat. Les deux fibres optiques, l'une en regard de la face "émettrice" du cristal, l'autre face au détecteur (Figure 2), voir aussi Figure 4 de l'article reproduit dans le chapitre III) sont maintenues par un support en U ajusté par des câles d'épaisseur.

Exposons brièvement le principe de la mesure (Figure 4). L'ensemble du circuit est piloté par une horloge à quartz déclenchée à une fréquence de répétition de l'ordre de 1 KHz. Ce "générateur de retard" délivre deux impulsions start et stop ayant un intervalle de temps calibré (multiple de 10 nsec).

Les impulsions lumineuses (~ 20 nsec) sont délivrées par un générateur à câble (Tektronix 110) et ont une largeur d'environ 20 nsec. Côté détection, le premier étage de la chaîne d'amplification est un préampli $\times 20$ de très faible bruit ($5 \mu\text{V}$ RMS pour une bande passante de 20 MHz) construit au laboratoire. Il comporte un transistor unique RC 2N5109 de hautes performances. Les circuits sont câblés à l'intérieur d'un boîtier blindé en cuivre que l'on fixe sur le plateau supérieur du cryostat. On évite le couplage parasite avec le secteur en l'alimentant par des piles. Vu le faible niveau des signaux ($< 1 \mu\text{V}$) un second étage formé par un amplificateur d'impulsion Keithley 104, ($\times 100$, bruit 35 V RMS, bande passante 180 MHz), est généralement nécessaire avant le moyennage dans l'intégrateur (Boxcar PAR 162). Pour polariser les jonctions tunnel, on a besoin d'une alimentation construite au laboratoire dans la gamme du mV. Nous avons utilisé une source construite au laboratoire par Nick Lockerbie et pouvant opérer soit à tension constante, soit à courant constant. Cet instrument, dont le coeur est un amplificateur opérationnel PM 1-OP-07E de très faible tension d'offset ($30 \mu\text{V}$) et de très faible dérive ($0.3 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$) est une version améliorée de l'appareil décrit par Blackford (1971). Parmi ses caractéristiques importantes : Impédance de sortie $> 1 \text{ M}\Omega$ en mode générateur de courant (0-2A) et $< 25 \mu\Omega$ en générateur de tension, circuits limitateurs de courant, rampes de balayage. Précisons, pour terminer, que dans toutes les expériences de détection de phonons ou de quasiparticules, les jonctions tunnel sont polarisées à courant constant dans la région de courant tunnel thermique ($eV < 2\Delta$).

CHAPITRE IIIPROPAGATION BALISTIQUE DES PHONONS

Ce chapitre rapporte les observations de phonons balistiques et les mesures de libres parcours réalisées dans l'état supraconducteur en régime linéaire (faible puissance d'émission). Une grande partie des résultats a été rassemblée dans l'article :

"Measurement of Phonon Lifetimes in Bulk Superconducting Tin"

par B. Pannetier et J.P. Maneval

à paraître dans Physical Review B (1981).

que nous reproduisons plus loin.

Il y est décrit la mise en évidence de la fenêtre de propagation libre $0 < \Omega < 2\Delta_{Sn}$ à l'intérieur de laquelle les propriétés acoustiques à température nulle sont très semblables à celles d'un diélectrique. Puis, on distingue l'absorption de phonons par cassure de paires et l'atténuation, croissante avec la température, par les quasiparticules. Il résulte de cette dernière mesure une carte des constantes de couplage électron-phonon pour tous les modes de réseau principaux. Ces résultats diffèrent sensiblement des estimations antérieures provenant de mesures réalisées sur des films minces.

Suivent quelques compléments qui ne trouvaient pas leur place naturellement dans l'article.

A- MESURES DES DUREES DE VIE DE PHONONS DANS L'ETAIN SUPRACONDUCTEUR

B. Pannetier et J.P. Maneval

(à paraître dans Phys. Rev. B , 1981)

Résumé : Le transport de phonons dans des cristaux d'étain blanc a été étudié par la technique des impulsions de chaleur en utilisant comme détecteurs des jonctions tunnel supraconductrices. A basse température (0.6 K) la propagation balistique pure a été observée jusqu'à la fréquence de coupure (≈ 280 GHz) imposée par les processus de dissociation de paires. Nous avons pu en déduire le gap supraconducteur (anisotrope) associé à un mode donné de phonons. Nous avons également mesuré, à température variable, l'atténuation par les quasiparticules thermiques à fréquence fixée $\gtrsim 150$ GHz. Pour cette expérience particulière, la sensibilité de détecteur d'Aluminium était calibrée à l'aide d'un flux lumineux fixé. L'extrapolation des coefficients d'atténuation à la fréquence du gap conduit à des libres parcours moyens (pour le mécanisme de dissociation de paires) allant de 1300 \AA , pour le mode transverse lent de vecteur d'onde parallèle à $[110]$, à 6700 \AA pour le mode longitudinal selon $[001]$, ce qui est nettement supérieur aux estimations résultant d'expériences de films minces que l'on trouve dans la littérature.

B. Pannetier and J.P. Maneval

Groupe de Physique des Solides de l'Ecole Normale Supérieure,*
24 rue Lhomond, 75231 Paris 05, France

Abstract : Phonon transport in β -Sn crystals was studied by heat pulse techniques using superconducting tunnel junctions as detectors. At low temperature (0.6 K), pure ballistic propagation was observed up to the frequency cut-off (~ 280 GHz) set by the pair-breaking processes ; hence, we could determine the (anisotropic) superconducting gap associated with a given phonon mode. Then, the temperature-dependent attenuation by thermal quasiparticles was measured at fixed frequencies $\gg 150$ GHz. For that particular experiment, the sensitivity of the Al detector was calibrated against a known optical flux. Extrapolation of the attenuation coefficients to the gap frequency leads to pair-breaking mean free paths in tin ranging from 1300 Å for the slow transverse mode with wavevector along $[110]$, to 6700 Å for the longitudinal mode along $[001]$; that is much in excess of estimates from thin-film experiments quoted in the literature.

* Laboratoire associé au Centre National de la Recherche Scientifique

I - Introduction

Electron-phonon interactions are known to govern the transport properties of pure metals, either in the normal or the superconducting state. More specifically, such systems as the superconducting tunnel junctions (STJ) used as phonon transducers¹, or the superconducting films driven out of equilibrium² explicitly involve in their description the behaviour of the coupled quasiparticle and phonon populations, the major role belonging to excitations whose energy is of the order of the superconducting gap 2Δ (typically 1 millielectronvolt). Despite this importance, knowledge about high frequency phonons remains far behind the science gathered on the electron system.

Because ultrasonic methods fail to reach the frequency range of 10^{11} to 10^{12} Hz, investigation of phonon lifetimes has had to rely upon less versatile methods, which we mention briefly now. The phonon-assisted tunnel conductance of metal-insulator-metal diodes³ is a measure of $\alpha^2(\nu)F(\nu)$, where $\alpha^2(\nu)$ is a coupling parameter and $F(\nu)$ is the phonon density-of-states at the frequency ν . While useful near the Debye frequency, this method is not accurate enough in the "thermal" energy range delimited above. Besides this, Shapiro et al⁴ have demonstrated the adequacy of inelastic neutron scattering to determine phonon lifetimes, provided these are very short, as it occurs at 2Δ in high-gap materials. In view of these limitations, heat conductivity data, although they yield only averages over the whole phonon population, are still sought. Unfortunately, the lattice part in heat transport is in most cases not easy to disclose from the electron contribution. The

same problems arise in the thin-film determinations of pair-breaking lifetimes performed on Al⁵ and Sn^{6,7}. The heat pulse method, applied recently to bulk superconductors^{8,9}, to a large extent circumvents the above difficulties: (i) a phonon mode (wavevector \vec{q} ; polarization \vec{e}_q) is selected by geometry plus time-of-flight analysis; (ii) phonon transport is clearly distinguished from the electron transport. Sufficient crystalline quality is the only prerequisite. Maximum accuracy obtains for mean free paths of the order of the sample length, which is realized simply in a superconductor by adjustment of the thermal quasiparticle population.

In the free electron theory, coupling of the electrons to a pure longitudinal wave can be incorporated into a deformation potential model¹⁰. Apart from population, and possibly, interference factors, the squared Fourier component of the interaction of a phonon of wavevector \vec{q} and velocity s , has the form (with h : Planck constant, and $q = |\vec{q}|$):

$$|G(q)|^2 = \frac{hc^2}{4\pi\rho s} q \quad (1)$$

C stands for the deformation potential constant, ρ for ion mass density. This leads to a mean free path in the normal state (at the frequency $\nu = qs/2\pi$) of:

$$\lambda_N(\nu) = \frac{h^3 \rho s^2}{8\pi^2 m^2 C^2 \nu} \quad (2)$$

where m is the electron mass. As noted by Leibowitz¹¹ following Pippard¹², the treatment of transverse waves is much more complex for there exist other types of coupling, namely the "electromagnetic" interaction and the "collision drag" effect of the impurities moving with the lattice. However, none of them competes in the gigahertz range with the "real metals" effects due to the departure from the free electron model. The latter are again tractable in the deformation potential approximation, so that Eq. (2) will hold for both

the longitudinal and the transverse phonons, provided C is endowed with q and polarization dependence.

Bardeen, Rickayzen and Tewordt¹³, using first-order perturbation theory, computed phonon relaxation rates in ideal, type I, superconductors. Essentially two mechanisms take place: the phonon-quasiparticle scattering, similar in character, if not in magnitude, to the interaction with the electrons in the normal state and, for phonons of energy $h\nu \geq 2\Delta$, the dissociation-recombination of Cooper pairs.

If one calls α_N and α_S the attenuations (inverse mean free paths) in the normal and superconducting states and by α_{gp} and α_{pb} the attenuations for the quasiparticle and the pair-breaking mechanisms respectively, one can deduce from Reference 13:

$$\alpha_S = \alpha_{gp} + \alpha_{pb} \quad (3)$$

with

$$\frac{\alpha_{gp}}{\alpha_N}(\nu, T, \Delta) = \frac{2}{h\nu} \int_0^\infty \rho(E) \rho(E+h\nu) \left[1 - \frac{\Delta^2}{E(E+h\nu)} \right] [f(E) - f(E+h\nu)] dE \quad (3b)$$

$$\frac{\alpha_{pb}}{\alpha_N}(\nu, T, \Delta) = \frac{1}{h\nu} \int_k^{h\nu-\Delta} \rho(E) \rho(h\nu-E) \left[1 + \frac{\Delta^2}{E(h\nu-E)} \right] [1 - f(E) - f(h\nu-E)] dE \quad (3c)$$

where f is the Fermi-Dirac energy distribution function,

and $\rho(E) = E/(E^2 - \Delta^2)^{1/2}$ is the relative quasiparticle density of

states, normalized to the normal state. The first component α_{gp} has a strong temperature dependence which reflects the variations of the quasiparticle population. On the contrary, α_{pb} , which counts the pair-breaking events, has the property of being essentially a step function of the frequency. A semilog plot of α_S/α_N as a function of ν is drawn in Fig. 1 for the case of tin (critical temperature $T_C = 3.72$ K; zero temperature gap $2\Delta_0/h = 273$ GHz).

It is a universal function of the variables $h\nu/\Delta$ and T/T_c . We note for later use that, at $h\nu = 2\Delta$ and $T \ll T_c$, the pair-breaking attenuation is $\pi/2$ times the normal one, while quasiparticle attenuation is negligible.

However, the ideal metal is an oversimplified picture of the Sn metal.

Due to extension of the Fermi surface as far as the sixth Brillouin zone¹⁴, and non-sphericity of the Bloch cell - functions, the matrix element of the electron-phonon interaction cannot have the simple structure of Eq. (1). This in turn entails directional dependence of the phonon lifetimes, as well as of the superconducting gap $2\Delta_k$, defined in principle as the condensation energy of the electron pair of opposite spins and opposite wavevectors \vec{k} and $-\vec{k}$.

Provided the electronic lifetime

τ_{el} is long enough ($\nu\tau_{el} \gg 1$) the energy-momentum conservation between electronic states of energy $\epsilon(\vec{k})$ and $\epsilon(\vec{k}')$, related by a phonon (\vec{q}, \vec{e}_q) , of frequency ν_q , implies (modulo a reciprocal lattice vector):

$$\vec{k} \pm \vec{q} = \vec{k}' \quad (4a)$$

$$\epsilon(\vec{k}) \pm h\nu_q = \epsilon(\vec{k}') \quad (4b)$$

Conditions (4a) and (4b) define on each sheet of the Fermi surface two effective zones (E.Z.), the one for \vec{k} , the other for \vec{k}' (Fig. 2).

In multiply-connected Fermi surfaces, the two E.Z. might belong to distinct sheets (Umklapp processes); it is not even excluded that, for a given \vec{q} , each sheet be associated preferentially with one or the other of the \vec{e}_q . Leaving aside these subtleties, we rather take advantage of the smallness of \vec{q} to reduce

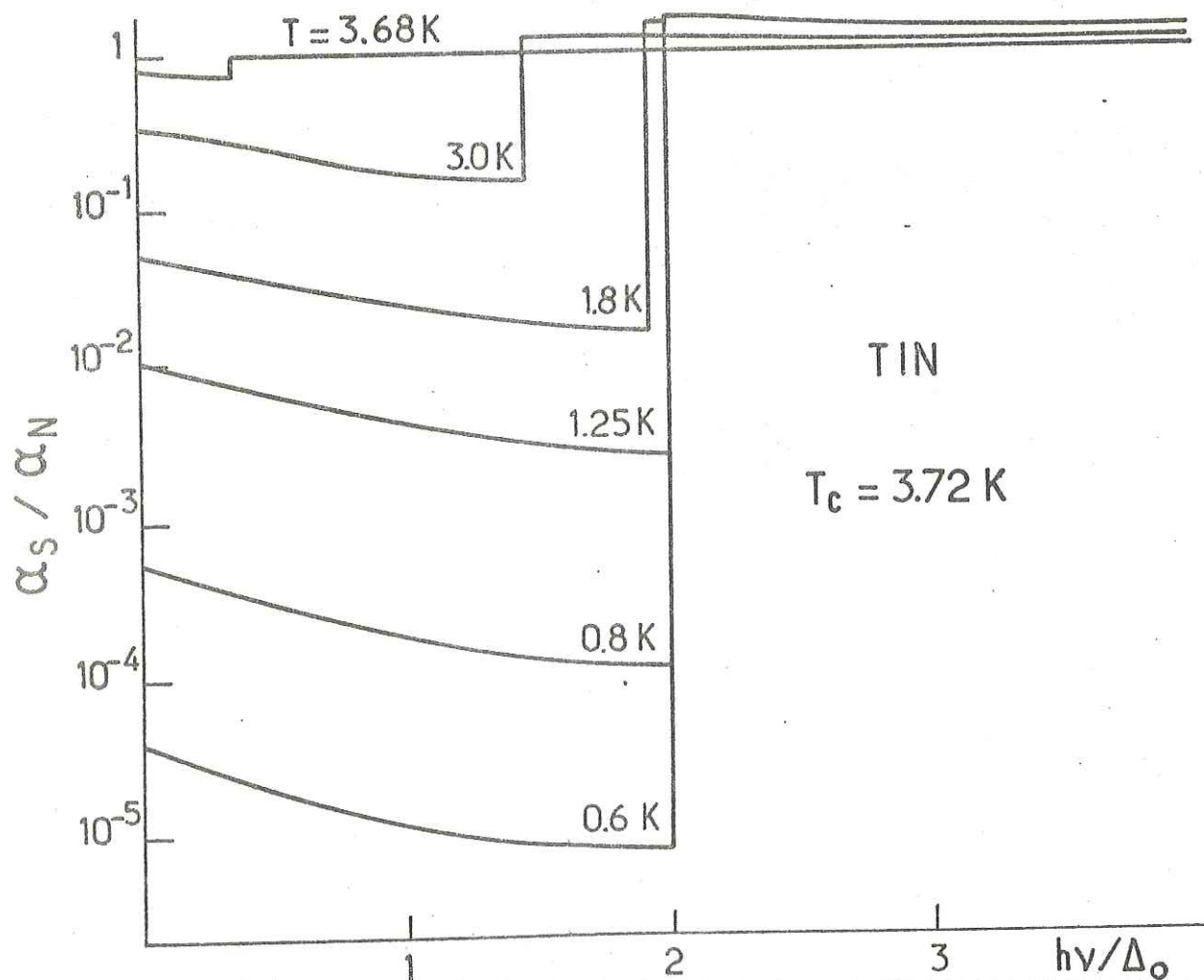


Fig. 1 Theoretical computation of the superconducting to normal attenuation ratio α_S/α_N as a function of the reduced energy parameter $h\nu/\Delta_0$ where Δ_0 is half the zero-temperature gap.

the general problem. Even at the gap frequency, q is no larger than $\sim 10^7 \text{ cm}^{-1}$, so that the first-order approximation in \vec{q} , $\vec{q} \cdot \vec{v}_k = 2\pi v_q$ (\vec{v}_k is the electronic group-velocity) may be accurate enough. This is the famous "surf-riding" condition according to which the zone corresponding to a mode (\vec{q}, \vec{e}_q) is practically defined by the orthogonality relation $\vec{q} \cdot \vec{v}_k = 0$ (it is understood that $s \ll v_k$). The superconducting attenuation is obtained through the zone integration :

$$\alpha_S(\vec{q}, \vec{e}_q, T) = \frac{2}{\pi^2} \int_{\text{E.Z.}} d\phi \frac{R_k}{v_k} \left| g_k(\vec{q}, \vec{e}_q) \right|^2 \frac{\alpha_S}{\alpha_N}(v, T, \Delta_k^2) \quad (5)$$

in which α_S/α_N is that function of v , T , Δ , already defined by Eqs. (3a,b,c) for the isotropic case, computed at each point \vec{k} of the Fermi surface as if $\Delta = \Delta_k = \text{constant}$. Eq. (5) results from a straightforward evaluation of the probabilities of transitions $\vec{k} \rightarrow \vec{k} + \vec{q}$ along the effective zone, and reduces, for longitudinal attenuation in the normal state, to Eq. (27) of Ref. 12. R_k is the reciprocal Gaussian curvature at point \vec{k} , ϕ is the angle ($0 \leq \phi < 2\pi$) formed by the Fermi velocity with an arbitrarily fixed direction $\perp \vec{q}$ and $|g_k(\vec{q}, \vec{e}_q)|^2$ is the squared matrix element introduced in Eq. (1) adapted to anisotropic electron-phonon interaction (allowing for dependences upon phonon mode and electronic state).

Thus, phonon lifetime measurements and gap measurements by phonons yield "E.Z. averages" specific of a given mode, instead of local values on the Fermi surface. It is not to be confused, however, with the complete smearing out of the anisotropy of, say, the phonon-measured gap which occurs when the condition $q \gg 1$ (1:electronic mean free path) is released ¹⁵.

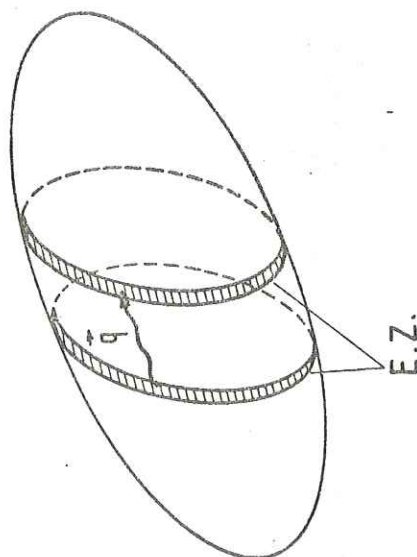


Fig. 2 Zones of the Fermi surface effective for the interaction with a phonon of wavevector \vec{q} (schematic). Several sheets of the Fermi surface may participate.

In this work, one monitors the attenuation of heat pulses in the superconductor in order to get the quantities $\Lambda_N(\vec{q}, \vec{e}_q)$. To modal selection inherent in the heat pulse method, one adds the frequency selection provided by the STJ quantum detectors, whose threshold ν_{det} is adjustable with the gap of their constitutive material. On the other hand, low-pass filtering is set by the pair-breaking processes occurring in the bulk Sn crystal so that the "ballistic frequency window" :

$$\nu_{\text{det}} \leq \nu < 2\Delta_{\text{Sn}}/\hbar \quad (6)$$

is sorted out of the original spectrum generated in the heat pulse (Fig.3). Our results are therefore traceable to a band, not to a single frequency, but we will see later that frequency definition is not that poor.

The paper is organized as follows. Phonon mean-free-path measured values appear in Section VI where they are compared to the ultrasonic, thin-film and theoretical available data. Section II shortly describes the heat pulse method. Material presented in Section III (heat pulse velocity, anisotropy, chromatic dispersion) is an illustration of free lattice propagation ; relevant elasticity theory is summarized in the Appendix. The observations of the pair-breaking limit are presented in Section IV. In Section V finally, it is explained how the normal mean free paths are extracted from the temperature dependence of the bulk transmissivity ; as the application of a STJ at varying temperature is not a usual one, we detail two independent methods of calibration we have devised for this purpose.

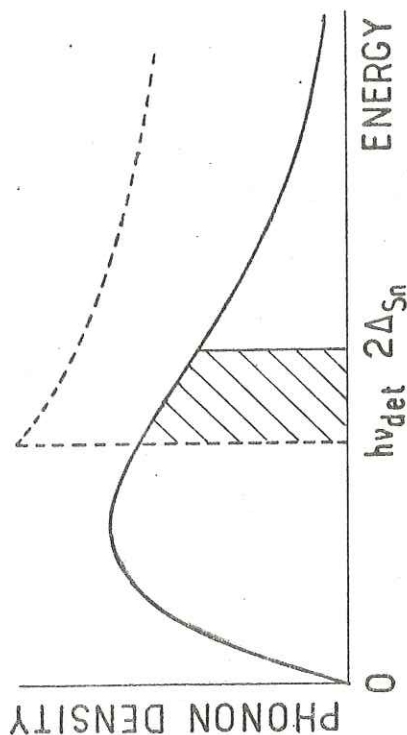


Fig. 3 Schematic of the generated phonon density spectrum (---) and detector response function (—) against phonon energy. $2\Delta_{\text{Sn}}$ is the mode-dependent pair-breaking limit set by the Sn crystal. Only the shaded part is detected.

II - Experimental techniques

Acoustical phonons of high energy are produced in a simple fashion by heating a metallic film (copper : 350 Å) deposited by evaporation. To electrically insulate this "phonon transducer" from the propagation medium, the tin crystal is first covered with a SiO layer (5000 Å) whose quality is important as has been stressed ~~in the context of heat pulse work~~ in another context.¹⁶ Instead of being driven by current pulses, the copper film may alternatively be excited by a laser pulse of similar duration (20 nanoseconds) and power. For the latter case, a quarter-wavelength overlay (germanium : 320 Å) is evaporated on top of copper for more-efficient photon absorption, while the copper film then has the function of thermalizing photons into acoustical phonons.

The precise shape of the emitted spectrum is of no matter in this work. However, interpretation of mean free path measurements becomes simpler if it can be assumed that the spectrum does not depend significantly upon the substrate (Sn) temperature T. This condition, we believe, is well satisfied in our experiments. No further than for the purpose of making an estimation, let us admit that the situation is approximately described by the blackbody radiation model¹⁷. Then, the power dissipation P per unit area would be related to the heater temperature T_H by the law :

$$P = \sigma (T_H^4 - T^4) \quad (7)$$

where σ is the acoustic analogue of the Stefan constant. It is seen that at fixed input power, T_H and, correspondingly, the characteristic frequencies ($\nu \approx 2.8 k_B T_H / \hbar$ in a Planck spectrum) will be very little T - dependent, provided $T_H \gg T$ (k_B is the Boltzmann constant).

Slices with thickness from 1.0 to 4.0 mm were spark-cut from 99,999 % pure single crystal ingots (Metals Research Ltd) along planes perpendicular to the symmetry directions [001], [110] and [100] of the tetragonal structure of white tin. Smooth rather than perfectly flat surfaces are desired since one deals with incoherent waves. To achieve this, the end faces were gently polished on a vibrating machine (Wirtz Ltd) by using directly the thinnest grade of abrasive powder (alumina : 1 μ m). The resistive electron mean free path at 4.2 K, as determined from the persistence of the Foucault inductive currents, was found to be $1 \approx 0.15$ mm.

Two materials were used in the fabrication of the superconducting tunnel junctions. Granular aluminium ($\nu_{\text{det}} \approx 150$ GHz) films (electrodes : 1000 Å each) were formed by evaporation of 99,999 % pure Al out of an alumina crucible under pressure of about 2×10^{-6} torr. This method ensures reproducible critical temperature (≈ 2.05 K) and energy gap ($2\Delta = 0.625$ meV) within 2 %. The oxide barrier between the two electrodes was grown by allowing oxidation of the first Al film for two minutes under O_2 pressure (0.2 torr). In the case of tin junctions (2000 Å thick electrodes), the oxidation took place at 600 torrs during 16 hours.

STJs' geometry was in the shape of a cross (effective area : 0.2×0.2 mm²) having a normal (4.2. K) tunnel resistance of a few 10^{-2} ohm for both the Al and the Sn junctions. Connections to the coaxial circuits were made along thin copper wires finely stuck on each electrode by means of silver painting (because the insulating SiO layer is very fragile, pressure contacts have to be discarded). Contacts are minimized so as to avoid undesirable shunt capacitances to the grounded tin sample. A couple of glass monofibers diameter : 65 μ m were installed (Fig.4) to supply successively the

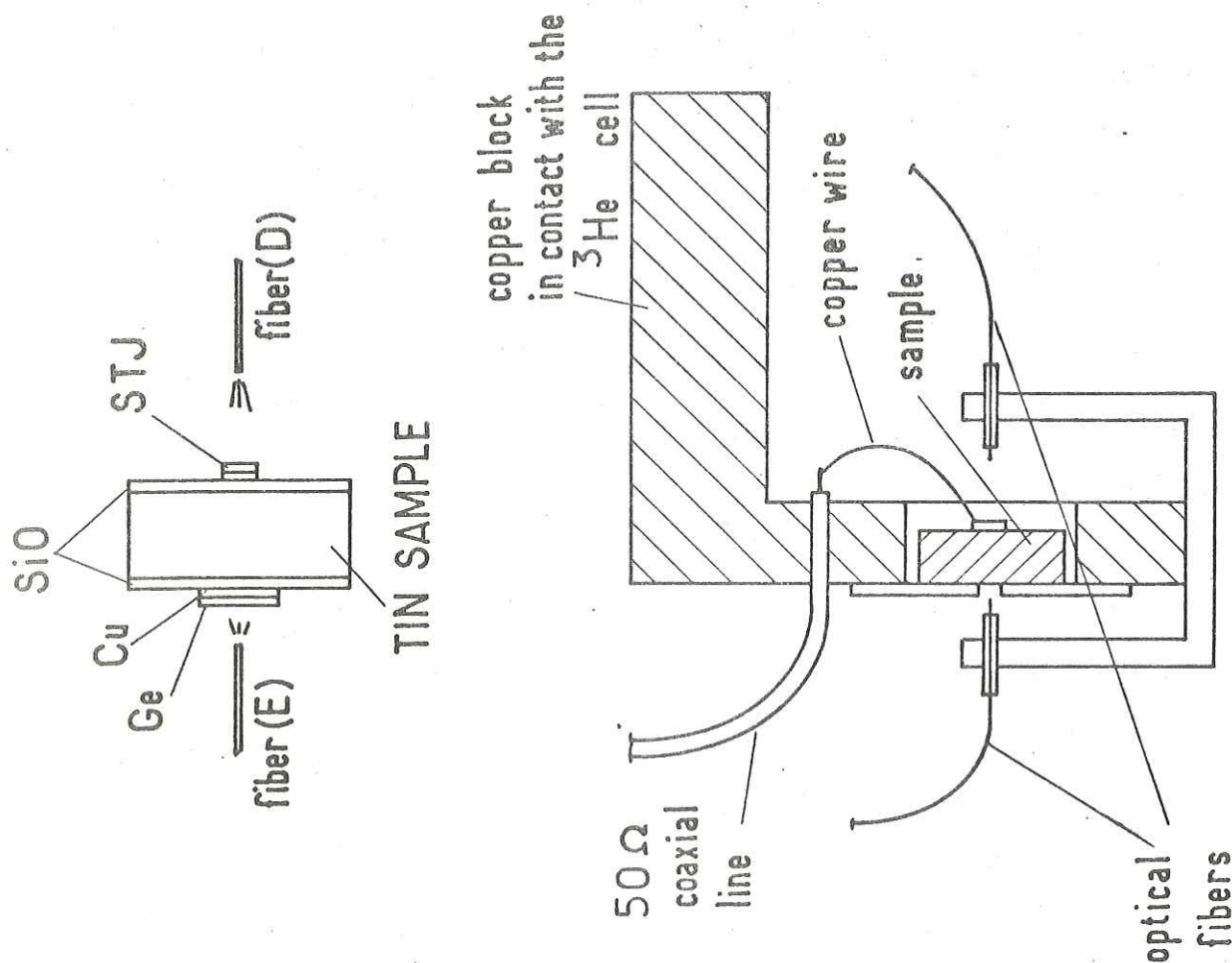


Fig. 4 Sample-holder equipped with optical and electrical feeders. Above is a representation of the thin-film transducers attached to the tin sample.

emitter and the detector with the optical pulses delivered by an Argon ion laser (Spectra Physics, 4 watts in continuous mode). The laser beam was initially focused into one of the fibers by means of a microscope front lens ($\times 10$) so that about 50 % of the power was transmitted by the whole optical set-up.

The experiments were performed in vacuum, the sample being held in thermal contact with liquid ^3He through a massive copper block. By continuous recondensing of the ^3He gas in the refrigerator cell, the cryostat could be operated through several hours in the range 0.5 K to 1.5 K by mere adjustment of the pumping rate. Temperature stability obtained this way ($\sim 10^{-3}$ K) was quite sufficient for our needs.

Measurement of the temperature can proceed in any of the following ways: Allen-Bradley carbon thermometer, ^3He saturated vapor pressure, or low-bias conductance of the aluminium diode. The thermal quasiparticle current of the latter was indeed found to obey the expected exponential dependence upon T^{-1} (see Section V), down to the lowest attainable temperature (0.47 K). As a result, when calibrated against the ^3He vapour pressure vs T curve, this provides a reliable thermometer in intimate contact with the sample itself.

The whole cryostat was shielded against earth and stray magnetic fields by a μ -metal enclosure, while an internal superconducting coil could be used to apply moderate fields (< 1 kOe) parallel to the superconducting junctions.

The STJ constant current bias was supplied by a high-stability DC source¹⁸. On the other hand, accurate transit times of the phonon bursts

were measured using a quartz-controlled delay generator (AUNE, Orsay). Thanks to a very low-noise ($\sim 5 \mu\text{V}$) first-stage preamplifier¹⁹, phonon STJ signals as low as $\sim 0.1 \mu\text{V}$ (minimum) could be amplified and averaged in a PAR 160 Boxcar Integrator.

In fact, rather large signals were obtained at low temperature at the Al STJ with only a few 10^{-2} W of incident power, dissipated on an effective area (light spot) of about 0.02 mm^2 . This is enough²⁰ to reach the heater temperature $T_H \gtrsim 3 \text{ K}$, sufficiently above T according to the discussion of Eq. 7 while, at the same time, the STJ receiver remains within the linear range of detection¹. Much higher powers ($> 1 \text{ watt}$) were required when using tin STJ as detectors. The reason is that, in this case, only a very small fraction of the heat pulse spectrum is available for detection. To obtain such high powers, Joule emission, in spite of its inherent defect — electromagnetic ringing — had to be chosen in place of laser excitation.

III. Phonons without interactions

Below the critical temperature, sub-gap phonons ($\hbar\nu < 2\Delta$) decouple from the electron system, as this is known from the T^3 - behaviour of the thermal conductivity, and ballistic propagation takes place^{8,9}. The longitudinal (L) and transverse (T_1, T_2) acoustic branches give rise to time-resolved peaks (Fig.5), which are identifiable by the corresponding velocities of sound. Indeed, heat pulse transmission through superconducting tin shares much in common with that in a dielectric crystal.¹⁶

In contrast, the strong attenuation $\alpha_N = \lambda_N^{-1} \gtrsim 10^4 \text{ cm}^{-1}$, typical of the normal state, is readily restored by application of a magnetic field

(insert of Fig. 5) : as long as the field is lower than critical ($H_C = 260 \text{ Oe}$ in our geometry), the magnetic flux is expelled from the sample by Meissner effect ; only the decrease of bolometer sensitivity is observed. At H_C , the whole phonon signal suddenly drops out. As the field is turned off, an important hysteretic effect is noted, which, however, may not be large on the scale of the sample size, since ballistic propagation can be perturbed by as thin as $\sim 1 \mu\text{m}$ thick normal regions. Partial ballisticty is recovered in a few minutes, but complete expulsion of the flux can only be achieved through thermal cycling ($T > T_C$). It is worth noting, although no elementary explanation can be given at this stage, that, in the same conditions of input power and temperature as those of Fig. 5, there is no detectable heat pulse signal in the normal state²¹.

Although acoustic properties of tin are rather well known, essentially from ultrasonic studies²², they are not easily accessible at thermal frequencies. Therefore, we devote the rest of this Section to the information gathered from heat pulse transmission.

As a member of the tetragonal holohedry, white tin is elastically characterized by a set of six second-order compliances²³ (see appendix) or equivalently by an independent set of six sound velocities. The principal directions $[100]$, $[110]$ and $[001]$ are the only ones to be associated with pure longitudinal and transverse polarizations. The corresponding heat pulse signals versus time shown in Fig. 6 were taken at 0.6 K , a temperature low enough that attenuation by the thermal quasiparticles be negligible. Unfortunately, this low temperature is also responsible for the relatively slow response (typically 500 nsec) of the granular Al STJ. Upon raising the temperature, time resolution improves (at the expense of sensitivity) and some details, such as the composite structure of the transverse peak along

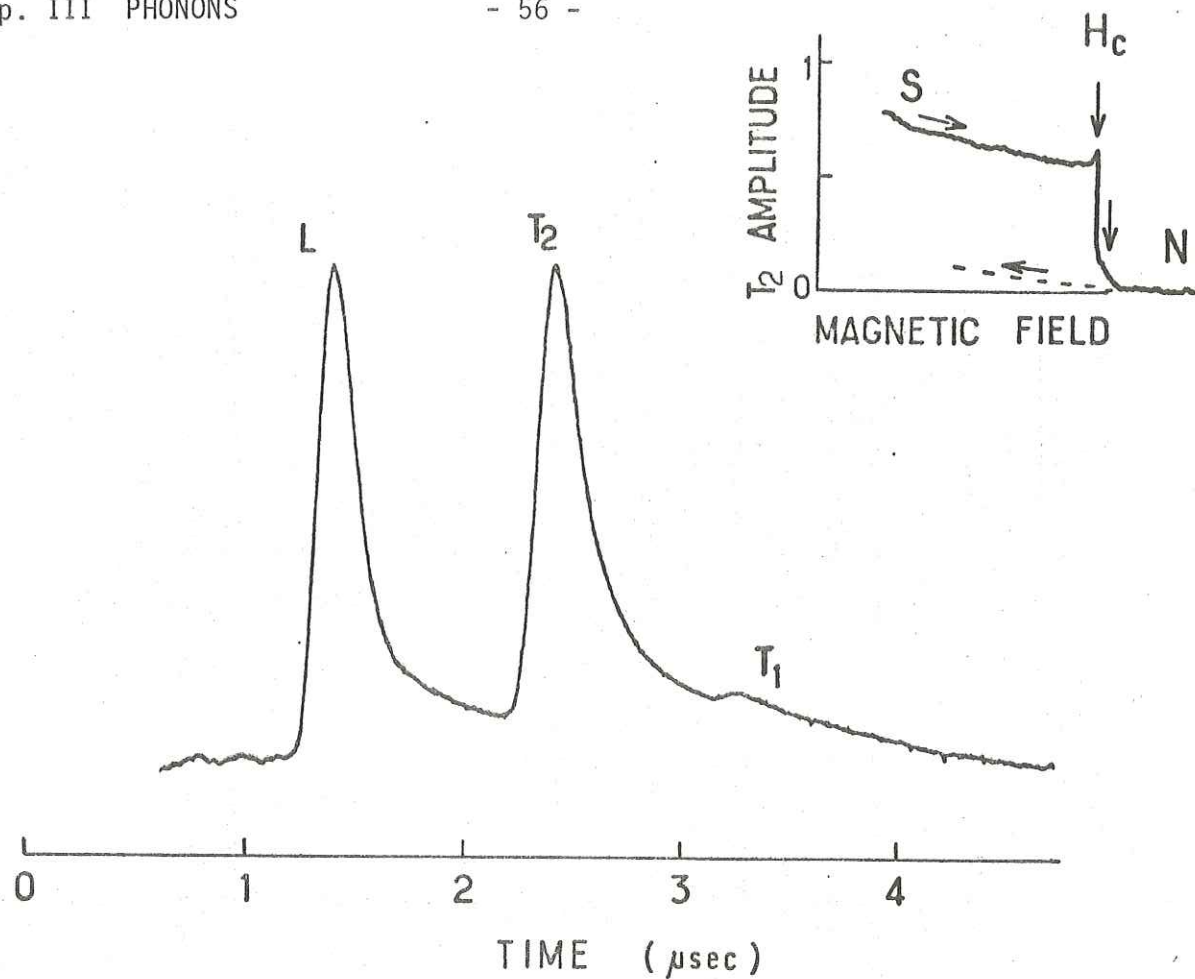


Fig. 5 Time-of-flight analysis of ballistic heat pulses along [110] in Sn.

Superconducting Zn bolometer. Sample length : 4.0 mm. Temperature :

0.75 K. Inset shows the dependence of the T_2 signal amplitude vs magnetic field parallel to the surface (Aluminium bolometer : 300 Å).

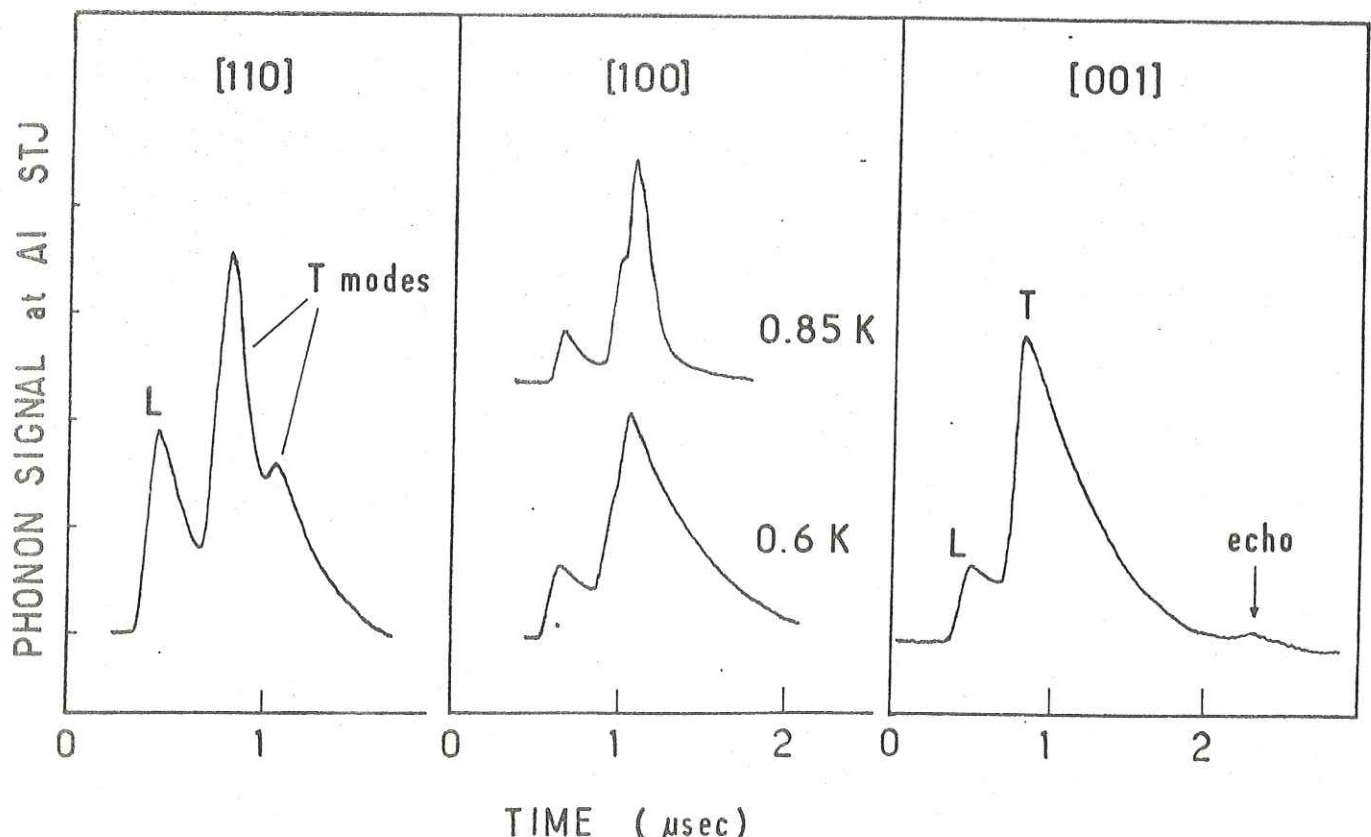


Fig. 6 Ballistic signals detected in tin crystals oriented along [110]: 1.0 mm ;

[100] : 1.62 mm and [001] : 1.49 mm. Temperature is 0.6 K except when specified. Granular aluminium STJ detector.

[100] , are revealed. We will come back to this point.

Energy, or group, velocities \vec{V}_λ (λ specifies the wavevector direction and the polarization) are read directly from the heat pulse transit times. Let us recall that, according to crystal acoustics, phase velocities \vec{s}_λ and group velocities \vec{V}_λ are not collinear in general ; a given direction of energy flow may be in correspondance with several \vec{q} -vectors.

As an illustration, let us consider the basal plane of the tetragonal lattice ²³ and its intersections (Fig. 7) by the triple sheet of the slowness surface, defined as the locus of the extremity of the vector $(\vec{q}_\lambda/2\pi v_\lambda)$ and of the phase velocity (\vec{s}_λ) surface, inverse of the preceding one. Energy velocity $\vec{V}_\lambda = 2\pi (\partial v_\lambda / \partial \vec{q}_\lambda)$ is normal to the slowness surface and verifies in absolute value :

$$V_\lambda = \frac{s_\lambda}{\cos(\vec{q}_\lambda, \vec{V}_\lambda)} \quad (8)$$

Along [100] for instance, in addition to the three ordinary modes, there exists an off-axis mode, labelled T'_1 , 33.65° away from the [100] direction, with group velocity $V_\lambda = 1.68$ km/sec, computed from ultrasonic elastic constants ²². More complete calculations concerning the tetragonal structure ²⁴ show that T'_1 is the only additional mode to have group velocity along [100]. It is responsible for the composite structure of the transverse peak at 0.85 K in Fig.6, while the pure modes, having velocities 1.95 and 1.91 km/sec are not resolvable in time.

Elasticity is not the main purpose of this paper, so these problems will not be developed at length. We simply list in Table I the raw results of heat pulse velocity measurements in front of the corresponding phase velocities taken from Reference 22. The agreement is good enough in view of the uncertainties associated with both methods. The related subject of phonon focussing can

also be approached in the same manner. For instance, the T_1 mode along [110], associated with a large curvature of the slowness surface will be a direction of defocussing (reduced energy transport). This is clear from Figs. 5 and 6, if one compares the T_1 and T_2 transverse peaks along [110]. Prediction of intensity ratios along a general direction requires extensive calculations ²⁴.

Results for the symmetry directions, listed in Table I, show a relatively good agreement with the observations, especially if one considers all the imperfections from experimental origin (finite sample length, finite temperature and detector response time) or from the model (ignorance of the abundance of L and T modes in the sources, of the differential transmission factors at the interfaces, of modal dependence of the detectivity, etc...).

Chromatic dispersion ²⁵ of the acoustical waves is often unduly overlooked in the context of heat pulses, while it provides a useful test of the high-frequency transmissivity of a given material. In view of the cut-off of ballistic transmission at $2\Delta/\hbar = 273$ GHz (in tin), dispersion of times-of-flights is not expected to reach large values. However, the effect is observable on transverse modes (Fig. 8) : when the threshold of the Sn STJ detector is tuned by application of a magnetic field, transit times are reduced as less energetic (more rapid) phonons are detected.

Accuracy is not sufficient here to help in the determination of phonon dispersion relations. Nonetheless, it is a useful confirmation that one is indeed detecting high-frequency phonons.

IV - Free propagation window : the pair-breaking limit

Among the various methods of determining the superconducting gap, the most direct one to date is that of tunnel conductance. It has produced most of the accepted values for metals and alloys. As regards the anisotropy of 2Δ , however, there remains a number of conflicting, or uncorrelated, results²⁶. The ultrasonic (U.S.) method, because it uses the bulk of the transmission medium, seems preferable : in this case, the gap is deduced from the quasiparticle population factor $\exp(-\Delta/k_B T)$, itself derived from the temperature dependence of the U.S. attenuation. Our heat pulse determination of 2Δ also uses a bulk effect, but differs from the U.S. way in that the gap is resonantly probed by pair-breaking phonons ($h\nu > 2\Delta$).

In effect, at low reduced temperatures, the attenuation of high-frequency phonons (see Fig. 1) exhibits the same accident as the density of electronic excitations, yielding mean free paths either much longer than the typical sample sizes ($\lambda > 1$ mm) for sub-gap phonons, or considerably shorter for the pair-breaking phonons. The problem of determining 2Δ is that of finding the upper limit of the ballistic frequency window defined by Eq. (6). A tin STJ, finely tuned by a parallel magnetic field (H) is appropriate to perform a narrow-band analysis of that limit.

Propagation of phonons along [001] is an exemplary case. Along that direction, crystalline Sn is known¹⁵ to possess a relatively small gap, below the average gap typical of STJ films of the same material, so that the window is actually closed in zero field. Very faint signal amplitudes are indeed observed below the field $H^* = 135$ Oe. From there onward, and despite the (small) reduction of the STJ sensitivity, a steep rise of the L signal occurs (Fig. 9), giving

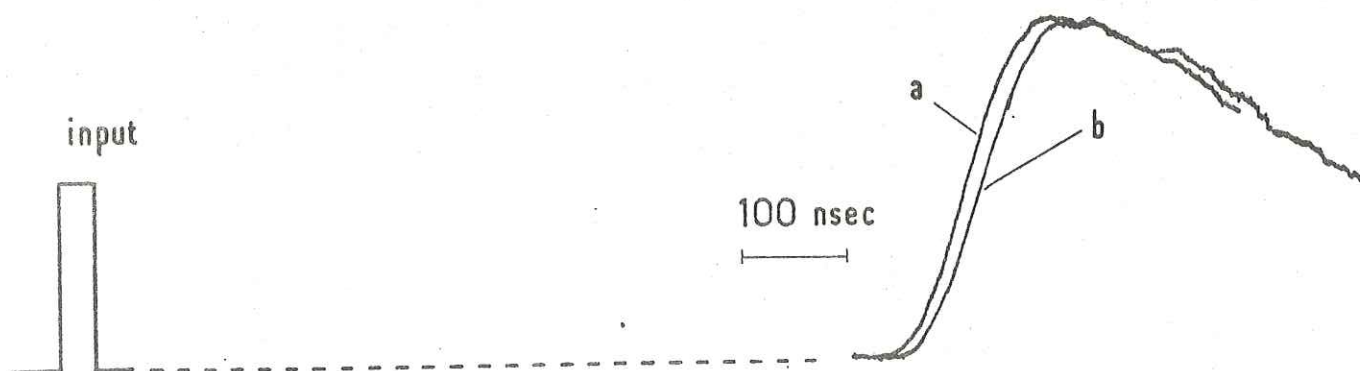


Fig. 8 Effect of velocity dispersion of the T phonons along [001]. Magnetically tuned STJ. (a) 210 Oe ; (b) 160 Oe. Peak amplitudes are normalized for comparison. Temperature : 0.6 K.

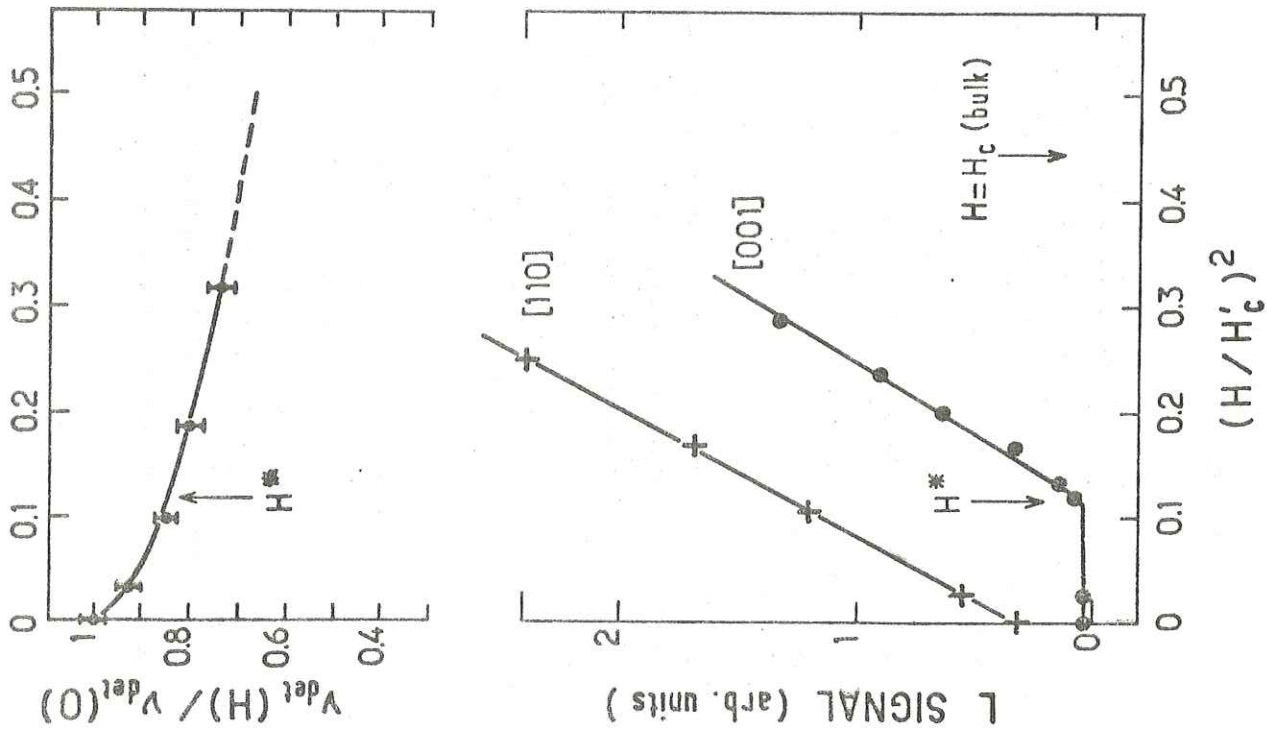


Fig. 9 : Lower graph : plot of ballistic L signals along [001] and along [110] as a function of the squared reduced magnetic field (H/H_c') where $H_c' = 400$ Oe is the critical field of the tin STJ. Upper graph : chromatic-dispersion^c measurement (see text) of the threshold for detection, normalized in zero-field. H^* is the kink value of the L signal along [001].

evidence of the opening of the ballistic window. It must be noted that the property described above requires some directional definition : if the aperture angle of the phonon beam exceeds $\sim 30^\circ$, as this was the case in Ref. 8, the T signal does not vanish in zero field. Clearly, this is associated with a larger gap for some phonons off-axis from the [001] direction.

The gap of interest here is the minimum condensation energy of the pairs interacting with the chosen phonon mode. It can be identified to $\hbar v_{det}(H^*)$ where H^* has the above meaning. Since, in a magnetic field, v_{det} cannot be unambiguously extracted from the current-voltage characteristics of the STJ, we resort to the other determination based on chromatic dispersion of high-frequency phonons. We refer for description of the method to previous work performed on Indium Antimonide crystals²⁵ : in essence, it consists in measuring the time-of-flight of the ballistic signals and relating it to the acoustic dispersion curves; ^{one thus} obtains the minimum detected frequency ν_{det} from the measured group velocity. We emphasize that ν_{det} receives this way a sharp definition, even in a magnetic field. A weaker point is the assumption of reproducibility of the STJ when we apply this calibration to experiments on another substrate (similarity of two junctions is decided from their current vs-voltage characteristics).

Calibration of $\nu_{det}(H)$, performed on an InSb transmission medium²⁷, is reported in the upper part of Fig. 9, showing tunability of at least $\sim 30\%$ of the tin STJ threshold frequency. The latter is read as 230 GHz, or $3.0 k_B T_B^c$ for $H = H^*$. Along [110], since ballistic signals show up in zero field (Fig. 9), the bulk gap $2\Delta_{Sn}$ must be superior to the STJ threshold $\hbar v_{det}(H=0)$. In such a case, its value is obtainable by extrapolation of the signal amplitude in

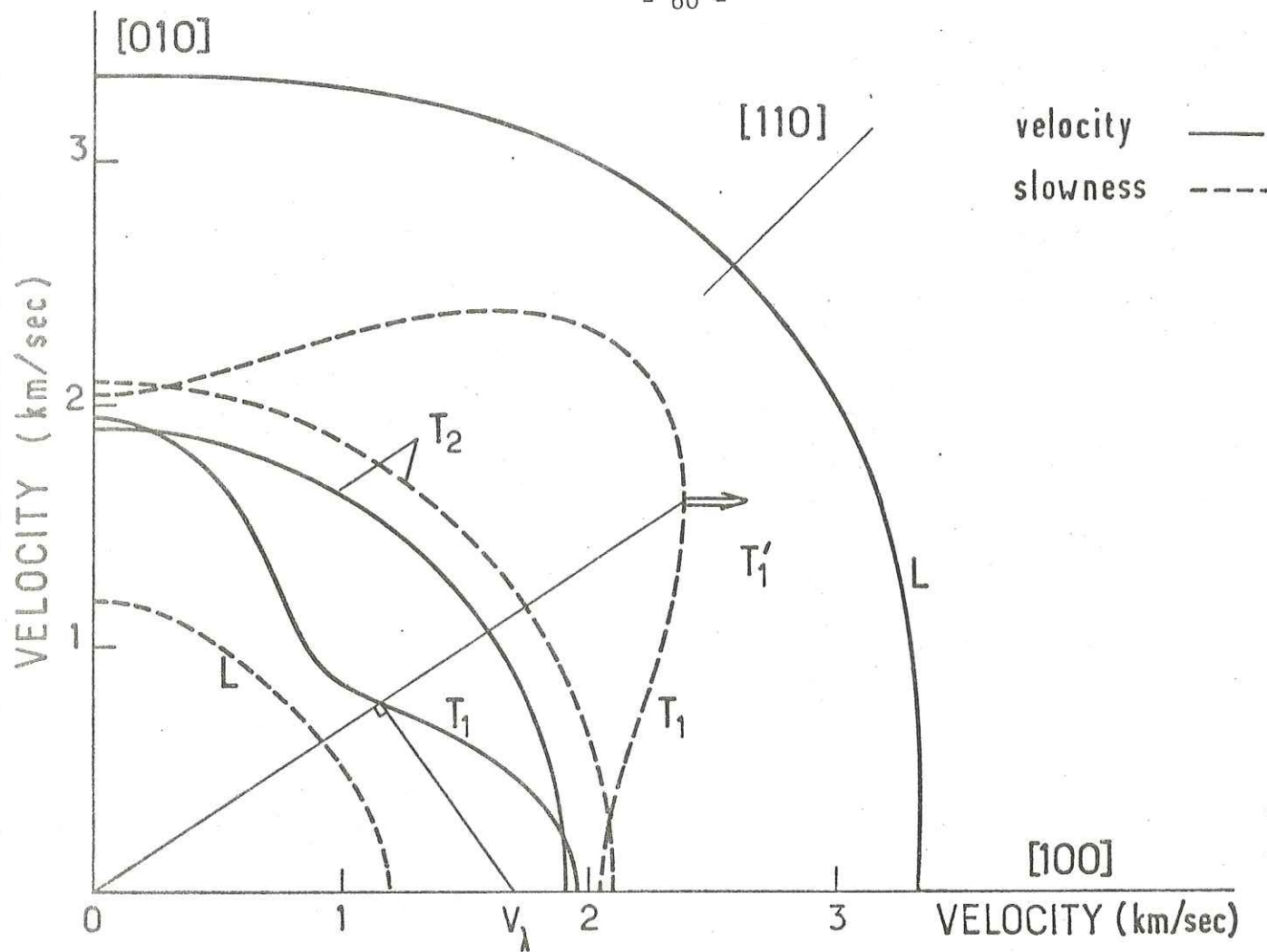


Fig. 7 Intersections of the velocity surface (—) and of the slowness surface (---) with the basal plane. Note the construction of the group-velocity of the oblique mode T_1' propagating along [100].

Table I. Acoustic parameters of heat pulse propagation in white tin. Comparison with ultrasonic predictions²² (see text)

Direction of Energy Propagation	Mode ^a	Wavevector Direction ^b	Polarization	Group Velocity ^c (km/sec)	Heat Velocity (this work)	Relative mode intensities	
						calculated ²⁴	this work
[100]	L	[100]	[100]	3.34	3.31	1	1
	T ₁	[100]	[010]	1.95	2.02	3 ^d	3
	T _{1'}	$\theta = 90^\circ$ $\varphi = 33.65^\circ$	$\theta = 90^\circ$ $\varphi = -52.42^\circ$	1.68	1.78		
	T ₂	[100]	[001]	1.91		1	
[110]	L	[110]	[110]	3.65	3.66	2	1
	T ₁		[110]	1.30	1.30	0	0.3
	T ₂		[001]	1.91	1.94	1	1.6
[001]	L	[001]	[001]	3.74	3.8	1	1
	T ₁ , T ₂		< 001 > plane	1.91	2.0	4	5

a) Notations of Ref. 24.

b) Spherical coordinates. θ is the angle with the [001] axis, φ the azimuthal angle relative to the axis [100].

c) Computed from the elastic constants of Ref. 22.

d) Summation over modes is understood in each box.

TABLE II : Measurements of superconducting gaps (in units of $k_B T_C$) by HF phonons (this work) compared with ultrasonic data taken from Ref. 15 for L modes, and Ref. 11 for T modes.

\vec{q} -direction	[100]			[110]			[001]	
Polarization	L[100]	T ₁ [010]	T ₂ [001]	L[110]	T ₁ [110]	T ₂ [001]	L[001]	T(basal plane)
HF phonons				3.7 ± 0.15	3.7 ± 0.2	3.7 ± 0.15	3.0 ± 0.1	3.0 ± 0.1
U.S. data	3.55 ± 0.04	3.7 ± 0.2	3.3 ± 0.2	3.84 ± 0.07			3.15 ± 0.04	3.4 ± 0.2

frequency space rather than in magnetic field space⁸. Crystalline gaps measured by our method ("high-frequency or HF phonons") are compared in Table II with data deduced from the temperature dependence of ultrasonic attenuation.

We have not been able to detect any difference between the gaps measured with L and T waves belonging to the same wavevector, contrary to what happens along [001] for U.S. waves. Otherwise, HF phonons yield results in agreement with U.S. data, except for L phonons along [001] for which, in our opinion, the respective accuracies are such that one can conclude to a significant difference. The U.S. method, except at very low temperature, gives an average over an effective zone, after Eq. (5), while the HF method involves a resonant process which will sample minimum values on the same zone. This is the most plausible explanation in view of the fact that our q -values ($\approx 10^7 \text{ cm}^{-1}$) are still too small to reach the Unklapp processes (if this was so, L and T phonons would likely be associated with different energy gaps).

One may add two remarks to this Section : (i) there is no indication of any "smearing-out" of the pair-breaking threshold and (ii) by low-pass filtering in the transmission medium and quantum detection in the STJ, one selects a rather narrow frequency window out of the initial heat pulse (270 to 285 GHz at H=0 for phonons having $\vec{q} // [110]$, for instance).

$$\delta V_{\lambda}(T) \sim \int_{2\Delta_{Al}}^{2\Delta_{Sn}} d(h\nu) G_{\lambda}(\nu) [\exp -\alpha_{qp}(\nu, T) \cdot d] S(\nu, T) \quad (10)$$

While the T-dependence of S can by no means be ignored, our aim is to disclose that of α_{qp} . This is possible thanks to the bulk size of d, which acts as an enhancement factor for the variations of α_{qp} and makes the temperature variations of S(ν, T) become secondary. In addition, the STJ detectivity can be handled by independent means and we now devote to this question a detailed discussion.

In a first step, we recall some basic features of phonon detection in the (non-realistic here) limit of pulse durations δt long compared to the STJ response time τ_{eff} (STJ under steady phonon irradiation). Let δN be the incremental quasiparticle density inside the electrodes induced by the flux \dot{n}_{ph} of $h\nu \geq 2\Delta_{Al}$ phonons. We assume δN to be much smaller than N_b , the quiescent density at bias current I_b (corresponding voltage is named V_b). In this small signal régime, the voltage drop δV across the junction follows a proportionality law :

$$\delta V \sim -R_b(T) \delta N \quad (11)$$

in which $R_b(T) = (dV/dI)_T$ is the dynamic resistance of the junction measured at V_b along the isotherm T, and with other proportionality factors non-dependent upon the temperature. Therefore, because of the relation :

$$\delta N \sim 2 K \dot{n}_{ph} \tau_{eff}(T) \quad (12)$$

between δN and the response time τ_{eff} (K being the probability for an incident phonon to be absorbed in the film), the T-dependence of the

V. Calibration of Al STJ and mean free path measurements

Generally speaking, phonon damping in the superconductor is the superposition of the electron-phonon scattering, with coefficient $\alpha_S = \alpha_{qp} + \alpha_{pb}$ from Eq.(3), and of other processes, such as defect and phonon-phonon scatterings, which we combine into a single coefficient α' . Let $G_{\lambda}(\nu)$ be the broadband spectrum (phonon number density in frequency space) generated at the emitter in the mode λ , and S(ν) be the STJ sensitivity, that is the voltage developed, in constant current bias conditions, by the STJ subjected to unit phonon flux. For a propagation length d, one collects in the steady state régime, signals whose amplitude δV_{λ} is proportional to :

$$\delta V_{\lambda} \sim \int_0^d d\nu G_{\lambda}(\nu) [\exp -(\alpha_{qp} + \alpha_{pb} + \alpha') \cdot d] S(\nu) \quad (9)$$

All functions under the integration sign are virtually frequency and temperature dependent. However, the complexity of Eq.(9) is only apparent.

Zero transmissivity of tin above the pair-breaking limit $h\nu = 2\Delta_{Sn}$, and zero detectivity of the STJ (granular aluminum) below the threshold $h\nu_{det} = 2\Delta_{Al}$ permit to sort out of the initial spectrum the restricted interval (see Fig. 3) : $2\Delta_{Al} \leq h\nu < 2\Delta_{Sn}$. This integration domain in turn may be considered as independent of the temperature, provided T is kept low enough compared to the critical temperatures of both tin and granular Al. Same thing can be said about the emission spectrum $G_{\lambda}(\nu)$ itself (see Section II for a discussion of this point). As to α' , we merely assume it to be negligible α , at least, temperature independent, on account of the ballistic-city observed (Figs. 5 and 6) when no electron-phonon interactions are present.

If one writes explicitly all temperature dependences, one has :

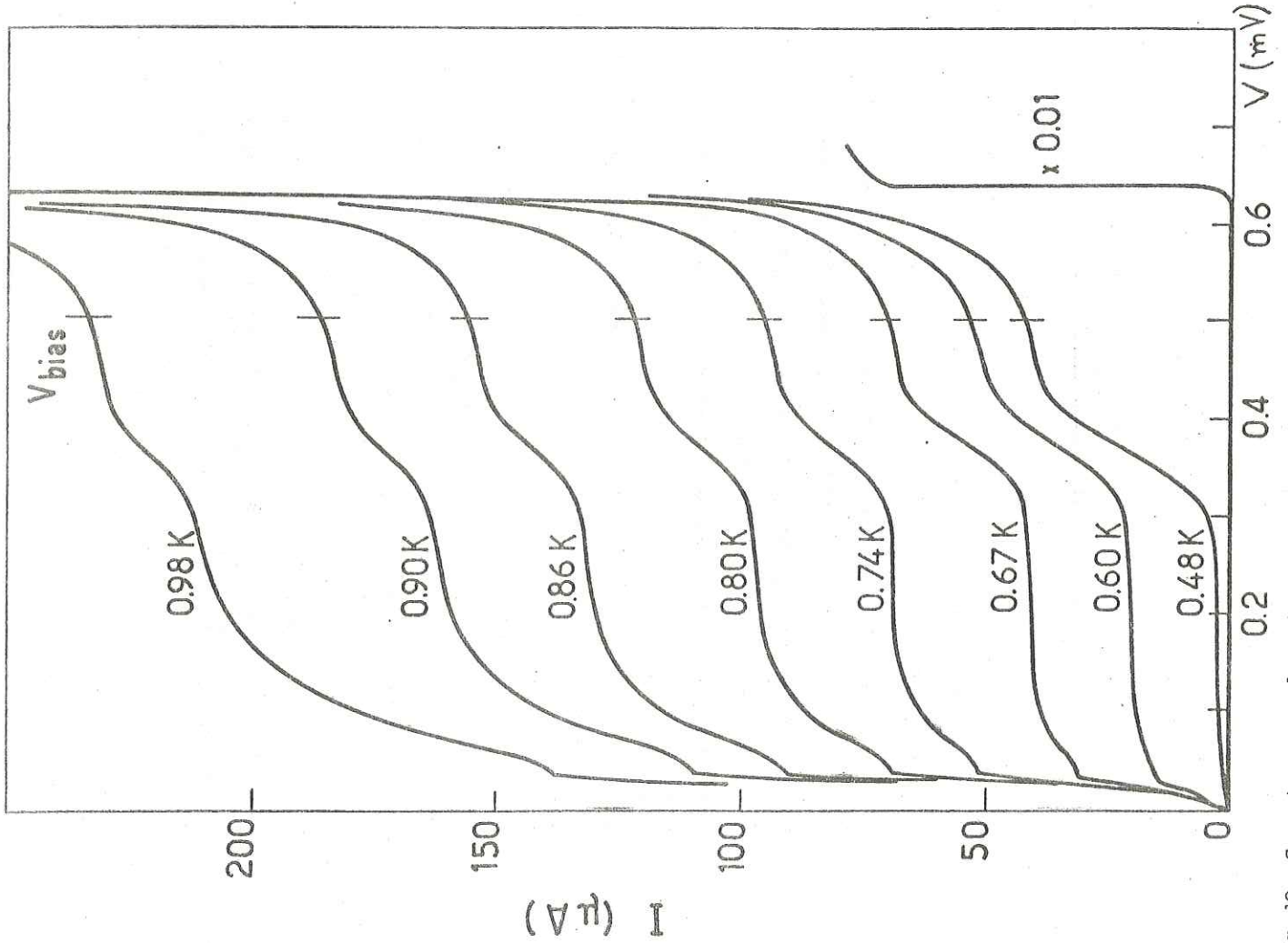


Fig. 10 : Current versus voltage isotherms of a granular aluminium STJ. Note the large mid-gap structure. Parallel field : 50 oersteds. For phonon detection, the bias was fixed at $V=0.5$ mV, where the dynamic resistance is practically T -independent.

sensitivity goes essentially as that of τ_{eff} . The latter is itself closely related, through the "phonon trapping factor" introduced by Rothwarf and Taylor²⁸, to the inverse density of quasiparticles present in the film. In the low-temperature approximation¹, one has :

$$N = N_{\text{th}}(T) = 2 N(0) \sqrt{2\pi} \frac{\Delta_{\text{Al}} k_B T}{\Delta_{\text{Al}}} \exp(-\Delta_{\text{Al}}/k_B T) \quad (13)$$

(the index th denoting thermal equilibrium values), and τ_{eff} should nearly fit the exponential law in T^{-1} :

$$\tau_{\text{eff}} = \tau_{\text{th}}(T) = \tau_0 \exp(\Delta_{\text{Al}}/k_B T) \quad (14)$$

if one forgets the $T^{-1/2}$ dependence. In the above equations, we have used single-spin

$N(0)$: density of electronic states at the Fermi level in Al, k_B the

Boltzmann constant and τ_0 a time constant depending upon the STJ constitution

parameters. However, Eqs. (13,14) no more hold valid in the over-injection

case, $N_b > N_{\text{th}}$, corresponding to bias currents larger than the thermal current

I_{th} (I_{th} is taken on the plateau of the I-V curves preceding $V = \Delta_{\text{Al}}/e$). Then,

if \dot{N}_b is the quasiparticle population injected per unit time, per unit volume of the junction, by the over-injection current defined as $I_b - I_{\text{th}}$, one has :²⁸

$$\tau_{\text{eff}}^{-2} = \tau_{\text{th}}^{-2} + 2\tau_{\text{th}}^{-1} \frac{\dot{N}_b}{N_{\text{th}}} \quad (15)$$

The suitability of superconducting junctions can be checked in several ways. The current-voltage isotherms of Fig. 10 show a very large mid-gap structure starting at $V_b = 0.31$ mV, which may be attributed to two-particle

tunnelling²⁹, or to other non-ideal processes likely to generate sub-harmonics

. Below this step, and down to the lowest accessible

temperature, the "thermal" current measured on the plateau (at $V_b = 0.25$ mV)

is found to obey the exponential law :

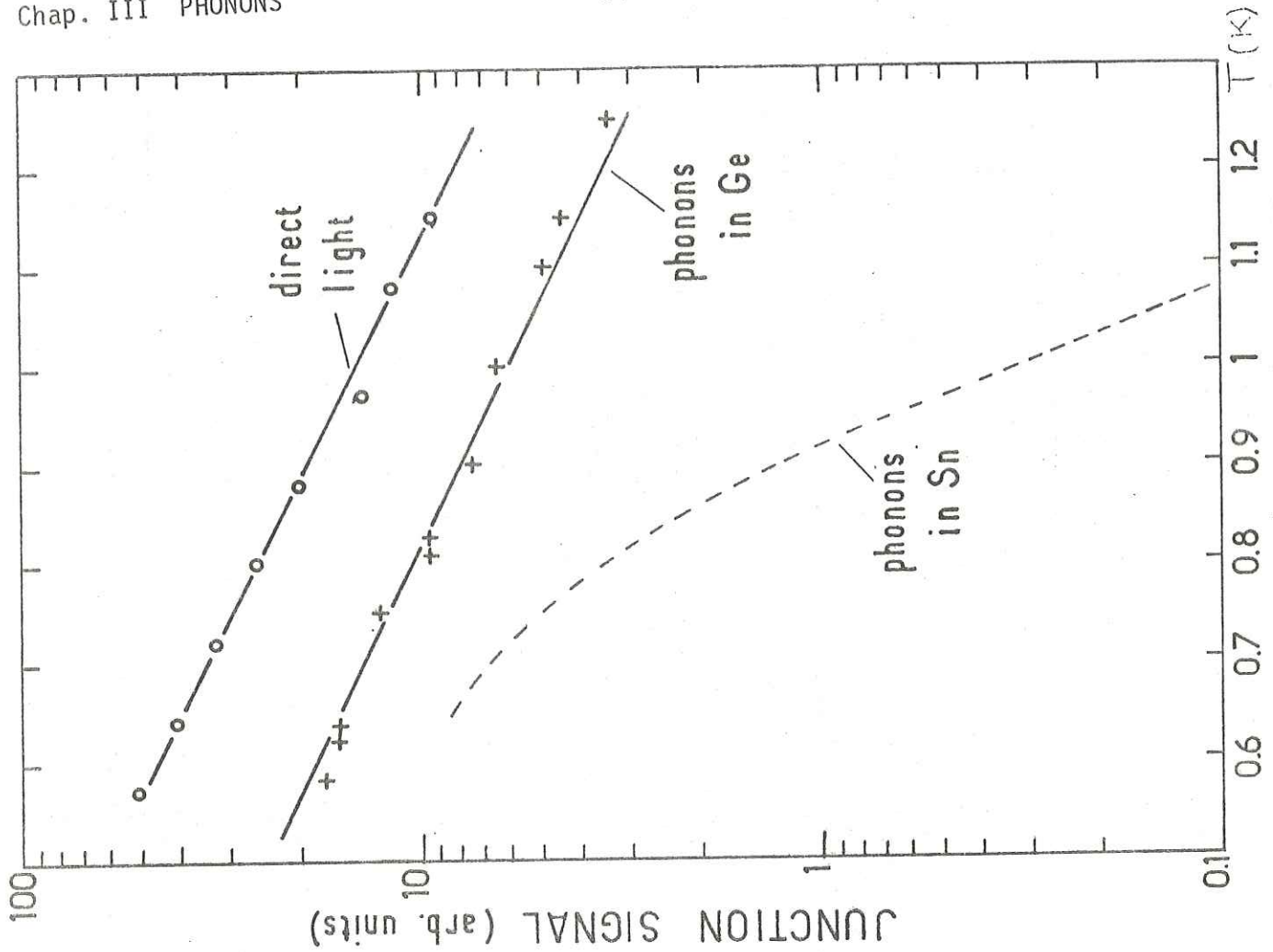


Fig. 11 Calibration of the granular Al STJ by laser pulses (○) and by a reference phonon pulse in a dielectric (+). Dotted line shows a

$$I_{th} = I_0 \exp(-\Delta_{Al}/k_B T) \quad (16)$$

with $I_0 = 11.3$ mA and $2\Delta_{Al} = 0.625$ meV measured on the I-V curve.

The time τ_{eff} estimated from the decay of the response to a delta excitation (laser pulse of duration ≈ 20 nsec) is also found to follow an exponential law (14), with $\tau_0 = 1.35$ nsec at $V_b = 0.25$ mV (measurements extend from 2200 nsec at 0.47 K down to ≈ 50 nsec at 1.10 K).

One avoids this inconvenient variation of the response time, and of the sensitivity through Eqs. (11, 12), by working in the over-injection region ($\Delta_{Al} < eV_b < 2\Delta_{Al}$). In this region, the recombination rate of the quasiparticles is determined, not by the strongly T-dependent N_{th} population, but rather by the non-equilibrium population imposed by the over-injection current already defined in connection with Eq. (15). Indeed, the inverse squared response times measured at 0.47 K verify³⁰ quite satisfactorily the expected linear dependence upon \dot{N}_i , up to the point that it becomes possible to deduce $N(0)$ from Eqs. (13,15). We obtain in this manner $N(0) = (1.65 \pm 0.20) \times 10^{22} (\text{eV})^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$, in perfect agreement with the values³¹ found for pure Al and for granular Al having a $T_C = 1.85$ K lower than ours ($T_C = 2.05$ K). That seems to confirm that the explanation for the enhancement of T_C is not to be looked for in the variations of $N(0)$.

Sensitivity to an energy flux was calibrated in the following way. The STJ under study was irradiated in situ (Fig. 4) by a laser pulse adjusted in amplitude and duration (160 nsec) so as to give at the STJ signals comparable to the phonon small signals that are detected. T-dependence of such a reference pulse (at fixed laser intensity) is plotted in Fig. 11. It shows a decrease by a factor 5 of the sensitivity between 0.6 K and 1.2 K.

L TRANSMISSION (dB/cm)

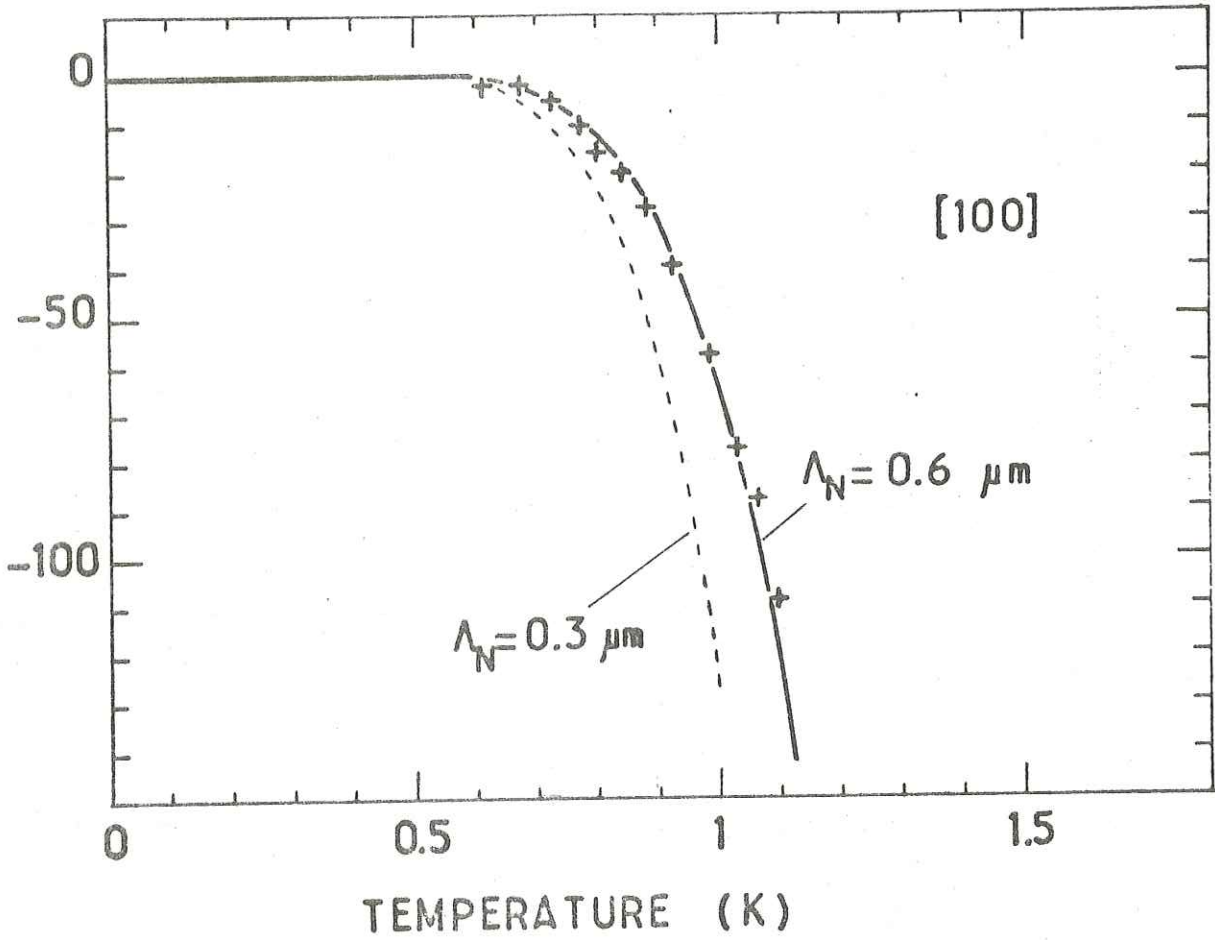


Fig. 12 Plot of the transmissivity, as defined by Eq. (17), of $\nu > 150$ GHz longitudinal phonons along [100] as a function of the temperature. Theoretical fit (bold line) uses $2\Delta = 3.52 \text{ K}_B T_C$ and $\Lambda_N = 0.6 \text{ }\mu\text{m}$. Dashed line corresponds to $\Lambda_N = 0.3 \text{ }\mu\text{m}$.

Fortunately, that is still small compared to the variation, by a factor > 100 , of a ballistic phonon pulse (L mode along [100]) having travelled in a 1.62 mm thick Sn sample. Let us again remark that the stabilization of the STJ sensitivity, without which no attenuation measurement could have been performed in confidence, is a result of over-injection.

A second calibration procedure, which can alternatively be considered as a test of the first one, uses the α -temperature independent, in principle - phonon propagation in a dielectric crystal. We excite, by conventional Joule effect, heat pulses in a pure germanium sample with an input power of 10 W/cm^2 , giving rise to a heater temperature $T_H \approx 3 \text{ K}$ according to the analysis of Section II. In such conditions, with little doubt one can admit (i) that the generated frequency spectrum $G(\nu, T)$ is practically independent of the substrate temperature T from 0.6 K to 1.2 K and (ii) that phonon attenuation in Ge is negligible in the same range. As noted in Fig. 11, there is a strict proportionality between the detected heat pulses in Ge and the calibrating laser pulses detected at the same T .

VI - Discussion of results

Putting $A_\lambda = \delta V_\lambda / \delta V_{\text{cal}}$, where δV_{cal} is the laser calibration signal, defines a transmission factor up to an additive constant. The latter is fixed on taking as unit of A_λ its low-temperature "plateau" value A_λ^0 , that corresponds to vanishing of the bulk attenuation ($\alpha_{\text{qp}} \approx 0$). So, one introduces the transmission coefficient, in decibels per centimeter, directly proportional to the attenuation (in cm^{-1}):

$$(10/d) \log_{10} (A_\lambda / A_\lambda^0) = -4.34 \alpha_{\text{qp}} \quad (17)$$

Table III contains for each principal mode the normal mean free paths thus obtained and the coupling constant $C(\vec{q}, \vec{e}_q)$ related to it via Eq. (2) (phonon frequency assumed to be 150 GHz). C is a convenient parameter to express the strength of the electron-phonon interaction in a frequency-independent way. C can also be derived from Leibowitz's work¹¹ on 30 MHz ultrasonic attenuation: for L waves, one straightforwardly applies Eq. (2) at the relevant frequency. For T waves, on the contrary, the U.S. attenuation is a combination of several mechanisms:

$$\alpha_N = \alpha_{em} + \alpha_{cd} + \alpha_{def} \quad (18)$$

out of which only the latter has the character of a "deformation potential" interaction and gives a contribution to C . The electro-magnetic attenuation α_{em} vanishes in the superconducting state and, so, can be subtracted as soon as the discontinuous drop of α_S just below T_C is known¹¹. The collision drag term α_{cd} , inversely proportional to q_L , also vanishes in the HF range; it is estimated through its relationship with the $g(q_L)$ Pipard function¹². This procedure leaves about 40 % of the total transverse attenuation at 30 MHz to α_{def} , which turns out to be the only contribution to C in the HF range, unless Umklapp processes arise for large wavevectors, that would have been inoperant in U.S. observations.

Between U.S. and HF (this work) deformation potentials C , the agreement is surprising in view of the difference of the experimental conditions and the scale of extrapolation (four orders of magnitude). This is without contest a success of the theoretical treatment of electron-phonon interaction. As a consequence, it seems unnecessary to introduce the Umklapp processes that have been invoked^{6,7} to explain thin-film results. An exception might be made for the T_1 mode along $[110]$ which corresponds to relatively large wavevectors ($\sim 10^7 \text{ cm}^{-1}$) and for which the discrepancy between the two values of C is largest (unfortunately, for this mode, α_{def} is only 10 % of

A plot of the above quantity against temperature is shown in Fig. 12 for the longitudinal mode along $[100]$. Compatibility of the measurements for several sample lengths had already been checked for the $[110]$ direction⁸. From experiment, it appears that L attenuation is dependent upon the wavevector direction, being strongest along $[100]$ at a given temperature. Dependence upon the polarization (not shown) does not obey a general rule: along $[110]$, T_1 , then T_2 modes vanish with increasing temperature before L does (see Fig. 1 of Ref. 8). On the contrary, $\alpha_{qp}(T) < \alpha(L)$ for phonons propagating along $[100]$.

Our conclusions are obviously relevant not to monochromatic phonons, but to the integration band of Eqs. (6,10). However, upon consideration that (a) the SNJ sensitivity is peaked at the threshold of detection and (b) transmissivity is a decreasing function of ν ($\Lambda_N \sim \nu^{-1}$), it is reasonable to refer to the single frequency: $\nu = \nu_{det} = 150 \text{ GHz}$.

Numerical fit to the experiments proceeds from Eq. (3b) where, among the parameters Δ and $\Lambda_N = \Lambda_N^{-1}$, only the second one remains unknown. Since we are now considering the attenuation of sub-gap phonons, the "E.Z. averaged" gap resulting from U.S. data look better suited than our Δ -values corresponding to the threshold of pair-breaking (Section IV). With this choice of Δ , Λ_N is then adjusted to yield a best fit such as that of Fig. 12 which was obtained with $2\Delta = 3.52 k_B T_C$ and $\Lambda_N = 0.6 \mu\text{m}$ for the L mode along $[100]$. Experimental accuracy has been much improved upon Ref. 8, thanks to laser calibration, to such extent that the choice of Δ , not the scatter of experimental data, becomes the major source of uncertainty. In fact, Λ_N turns out to be rather sensitive upon Δ : a reduction of Δ by 2 % causes an increase of about 10 % in Λ_N . Therefore, our Λ_N cannot be credited better than 20 % accuracy.

the total U.S. attenuation, so the accuracy of C deduced from U.S. data is probably poor).

Pair-breaking lifetimes τ_{PB} , or lifetimes of $h\nu \geq 2\Delta$ phonons, are also important parameters in problems involving the "phonon-trapping factor" ^{1,2}. If one postulates electron-phonon coupling is regular through the gap energy, one can make a smooth extrapolation of $|g(q)|^2$ up to the gap frequency to get :

$$\tau_{PB}^{-1} = \frac{\pi}{2} \times \frac{2\Delta}{h\nu_{det}} \times \frac{V_N}{V_{det}} \quad (19)$$

where Δ , V_N and V_{det} are respectively the half-gap, group velocity and normal mean free path of the mode (λ) one considers. These τ_{PB} are reported in Table III. A comparison is possible with the 110 picoseconds derived ³² from inelastic tunnel conductance (the notation for τ_{PB} is τ_0^{ph} in the referenced work by Kaplan et al.).

To permit a prediction useful in the context of thin-film absorption and so-called phonon fluorescence, it is also possible to perform an average of the pair-breaking mean free paths over the principal modes :

$$(\bar{\lambda}_{PB})^{-1} = \left\langle \frac{1}{V_N \tau_{PB}} \right\rangle_{\lambda} \quad (20)$$

In this equation, the bracket $\langle \rangle_{\lambda}$ indicates averaging over the principal modes with the weighting factor s_{λ}^{-2} to account for the phonon density of states in each acoustic branch (this puts emphasis on the transverse modes). One thus finds: $\bar{\lambda}_{PB} \approx 2700 \pm 500 \text{ \AA}$.

Table III. Electron-phonon coupling parameters in tin deduced from mean free path measurements at $\nu \geq 150 \text{ GHz}$

Propagation Direction	[100]			[110]			[001]	
Polarization	L [100]	T ₁ [010]	T ₂ [001]	L [110]	T ₁ [110]	T ₂ [001]	L [001]	T (basal plane)
$\frac{2\Delta}{k_B T_C}$	3.52 ^a			3.88 ^a			3.20 ^a	
$\lambda_N (\mu m)$	0.6	1.5 ^b		1.2	0.4	0.7	2	2
C (eV) (this work)	6.9	2.5 ^b		5.5	3.4	3.8	4.3	2
C (eV) from U.S. data ^c	6.3	2.2	1.3	5.7	~ 0.7		6.1	2.4
τ_{PB} (psec)	60	270 ^b		110	105	125	180	360

a) value selected for theoretical fit .

b) for modes T₁ + T₁ + T₂

c) derived from the normal-state attenuation constant given in Ref. 11 : α_N for L-modes and α_{def} for T-modes (see text).

Much lower values were deduced either from fluorescence efficiency⁶ ($\bar{\lambda}_{PB} \sim 600 \text{ \AA}$), or from reabsorption of recombination phonons in a STJ⁷ ($\bar{\lambda}_{PB} \sim 1000 \text{ \AA}$). In contrast, the escape of greater than 2Δ phonons from $0.3 - 0.7 \text{ \mu m}$ Sn films³³, or the incomplete filtering in 4000 \AA thick films³⁴ are compatible with pair-breaking mean free paths of several thousands ångströms. In our opinion, the interface conditions (towards substrate or helium bath), and possible participation of quasiparticles in the transport of excitations³³, contain enough uncertainty to explain the discrepancies of thin-film estimations.

To summarize, no supplementary (Umklapp) process affects sensibly the lifetimes of near-gap phonons. Measured mean free paths are indeed in surprising agreement with the extrapolated ultrasonic data. It is also amusing to note that the electron-phonon coupling constants associated to L modes approach the free-electron value, i.e., $2/3$ times the Fermi energy ($\approx 10.3 \text{ eV}$ in tin). On the other hand, ballistic propagation suggests a lifetime against phonon-phonon decay $\gtrsim 1$ microsecond around 1K.

Acknowledgements: The authors are indebted to N. Lockerie and D. Huet for valuable contribution and Prof. J. Bok for his interest in the work.

APPENDIX : ELASTIC WAVES IN THE TETRAGONAL STRUCTURE

The general equation defining the normal modes in an anisotropic medium of mass density ρ ($\rho = 7.387 \text{ g.cm}^{-3}$ for tin at 4.2 K) reads :

$$c_{ijkl} n_i n_j n_k n_l = \rho s_\lambda^2 u_i \quad (A1)$$

In this equation, a mode (λ) is defined by its polarization vector u_i and its direction cosines of wavevector n_i . The elasticity tensor c_{ijkl} for the tetragonal structure depends upon six independent elastic constants, labelled as c_{11} , c_{12} , c_{13} , c_{22} , c_{44} and c_{66} in the usual notations²³. From (A 1), $\{u_i\}$ and ρs_λ^2 are respectively the eigenvectors and the eigenvalues of the matrix :

$$\begin{array}{c} \left(\begin{array}{cc} c_{11}n_x^2 + c_{66}n_y^2 + c_{44}n_z^2 & (c_{12}+c_{66})n_x n_y \\ (c_{12}+c_{66})n_x n_y & c_{66}n_x^2 + c_{11}n_y^2 + c_{44}n_z^2 \\ (c_{13}+c_{44})n_x n_z & (c_{13}+c_{44})n_y n_z & c_{44}(n_x^2+n_y^2)+c_{33}n_z^2 \end{array} \right) \begin{array}{c} n_x n_z \\ n_y n_z \\ n_x n_y \end{array} \end{array} \quad (A 2)$$

In the basal plane ($n_z=0$), of particular interest here, the characteristic equation for the T_2 modes (polarization along $[001]$) is $\rho s_\lambda^2 - c_{44} = 0$, which factorizes out of the general secular equation. The two other modes L and T_1 have both their wavevector and polarization vector in the basal plane.

Phase velocities of pure modes can be deduced from Table (A 1).

Table A1 : Eigenvalues ρs_λ^2 of matrix (A2) for the principal directions.

Wavevector Polarization	[100]	[110]	[001]
L	c_{11}	$1/2(c_{11}+c_{12}+2c_{66})$	c_{33}
T_1	c_{66}	c_{44}	c_{44}
T_2	c_{44}	$1/2(c_{11}-c_{12})$	c_{44}

REFERENCES

- 1 W. Eisenmenger, in Physical Acoustics, edited by W.P. Mason and R. Thurston (Acad. Press, New York, 1976), Vol. XII.
- 2 D.N. Langenberg, Proc. Fourth Int. Conf. on Low Temperature Physics, edited by M. Krusius and M. Vuorio (North Holland, Amsterdam, 1975).
- 3 W.L. McMillan, and J.M. Rowell, in Superconductivity, edited by R.D. Parks (Marcel Dekker, New York, 1969), Vol. I.
- 4 S.M. Shapiro, G. Shirane and J.D. Axe, Phys. Rev. B 12, 4899, (1975).
- 5 A.R. Long, J. Phys. F (Metal Physics) 3, 2023 (1973).
- 6 R.C. Dynes and V. Narayanamurti, Phys. Rev. B 6, 143 (1972).
- 7 W. Eisenmenger, K. Lassmann, H.J. Trumpp and R. Krauss, Appl. Phys. (Springer-Verlag) 12, 163 (1977).
- 8 B. Pannetier, D. Huet, J. Buechner and J.P. Maneval, Phys. Rev. Letters 39, 646 (1977).
- 9 V. Narayanamurti, R.C. Dynes, P. Hu, H. Smith, and W.F. Brinkman, Phys. Rev. B 18, 6041 (1978).
- 10 A.H. Wilson, The theory of Metals, Cambridge University Press (1953).
- 11 J.R. Leibowitz, Phys. Rev. 133, A 84 (1964), and Phys. Rev. 136, A 22 (1964).
- 12 A.B. Pippard, Proc. Roy. Soc. A 257, 165 (1960).
- 13 J. Bardeen, G.R. Rickayzen and L. Tewordt, Phys. Rev. 113, 982 (1959).
- 14 A.P. Cracknell and K.C. Wong, The Fermi Surface, Clarendon Press, Oxford (1973).
- 15 J.M. Perz and E.R. Dobbs, Proc. Roy. Soc. A 297, 408 (1967).
- 16 D. Huet, B. Pannetier, F.R. Ladan and J.P. Maneval, J. Physique (Paris) 37, 521 (1976). This Reference contains a fuller description of the heat pulse method.
- 17 O. Wels, in "La Physique des Phonons de Très Haute Fréquence", J. Physique (Paris) 33, C 4 (1972), p. 49.
- 18 B.I. Blackford, Rev. Sci. Instr. 42, 1198 (1971). Our instrument is a modified version of the voltage source described in this reference.
- 19 We thank H. Kinder for information about this point.
- 20 The blackbody radiation model with perfect match provides an upper limit for σ . According to Ref. 17, $\sigma = 0.11 \text{ W.cm}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$ for copper.
- 21 Contrary to the simple-minded expectation that heat conductivity is larger in the normal state, at least in near-equilibrium conditions.
- 22 J.A. Rayne and B.S. Chandrasekhar, Phys. Rev. 120, 1658 (1960).
- 23 M.J.P. Musgrave, Crystal Acoustics, (ed. by J.J. Brandstatter, 1970).
- 24 C.G. Winterheimer and A.K. McCurdy, Phys. Rev. B 18, 6576 (1978).
- 25 D. Huet, B. Pannetier and J.P. Maneval, in Phonon Scattering in Solids, edited by L.J. Challis, V.W. Rampton and A.F.G. Wyatt (Plenum, New York, 1976), p. 283. See also D. Huet, J.P. Maneval and A. Zylbersztejn, Phys. Rev. Letters, 29, 1092 (1972).
- 26 J.L. Bostock and M.L.A. Mac Vicar in Anisotropy Effects in Superconductors, edited by Harold W. Weber (Plenum Press, New York, 1977).
- 27 D. Huet, Ph.D. Thesis (Paris, 1978) unpublished.
- 28 A. Rothwarf and B.N. Taylor, Phys. Rev. Letters, 19, 27 (1967).
- 29 W. Forkel and H. Schenk, Proc. Int. Conf. on Low Temp. Physics (LT XV) J. de Physique (Paris) 39, C6-593 (1978).

- ³⁰ B. Pannetier, PhD thesis (Paris, 1980) unpublished.
- ³¹ P.W. Epperlein and W. Eisenmenger, Z. Physik B 32, 167 (1979).
- ³² S.B. Kaplan, C.C. Chi, D.N. Langenberg, J.J. Chang, S. Jafarey and D.J. Scalapino, Phys. Rev. B 14, 4854 (1976).
- ³³ J.L. Singer and W.E. Bron, Phys. Rev. B 14, 2832 (1976).
- ³⁴ D. Huet, B. Pannetier and F.R. Ladan, in Internal Friction and Ultrasonic Attenuation in Solids (University of Tokyo Press, 1977) p. 151.

B. COMPLEMENTS A LA PROPAGATION BALISTIQUE DE PHONONS

1. Observation de phonons dans une fenêtre de fréquence très étroite : $\nu_d \leq \nu < 2\Delta_{Sn}/h$ déterminée par le substrat et la jonction du même matériau, mais modulée par un champ magnétique parallèle (Fig. 13 a). Sur la Fig. 13b mesure du seuil de dissociation de paires (ν_d) dans les directions $[001]$ et $[110]$ du cristal.

2. Facteur de transmission (en dB/cm) des phonons longitudinaux en fonction de la température, montrant le type d'accord obtenu entre théorie et expérience (Fig. 14). Remarquer que la mesure selon $[100]$ est la plus élaborée ayant bénéficié de tous les perfectionnements décrits par l'article (§ sur la calibration des jonctions d'aluminium granulaire).

3. Jonctions d'aluminium granulaire en régime de sur-injection. (complément au § 5 de l'article). Il y a proportionnalité entre l'inverse carré du temps de réponse de la jonction τ_{eff}^{-2} et le sur-courant $I_b - I_{th}$ (Fig. 15), ce qui est une confirmation des prédictions de Rothwarf et Taylor et une justification de notre méthode de mesure. L'ordonnée à l'origine donne τ_{th} (selon Equ. 15), alors que la pente, égale à $2\tau_{th}^{-1}/e\nu N_{th}$, permet de déterminer directement N_{th} et d'en déduire N_0 . ν est le volume de la jonction tunnel d'aluminium.

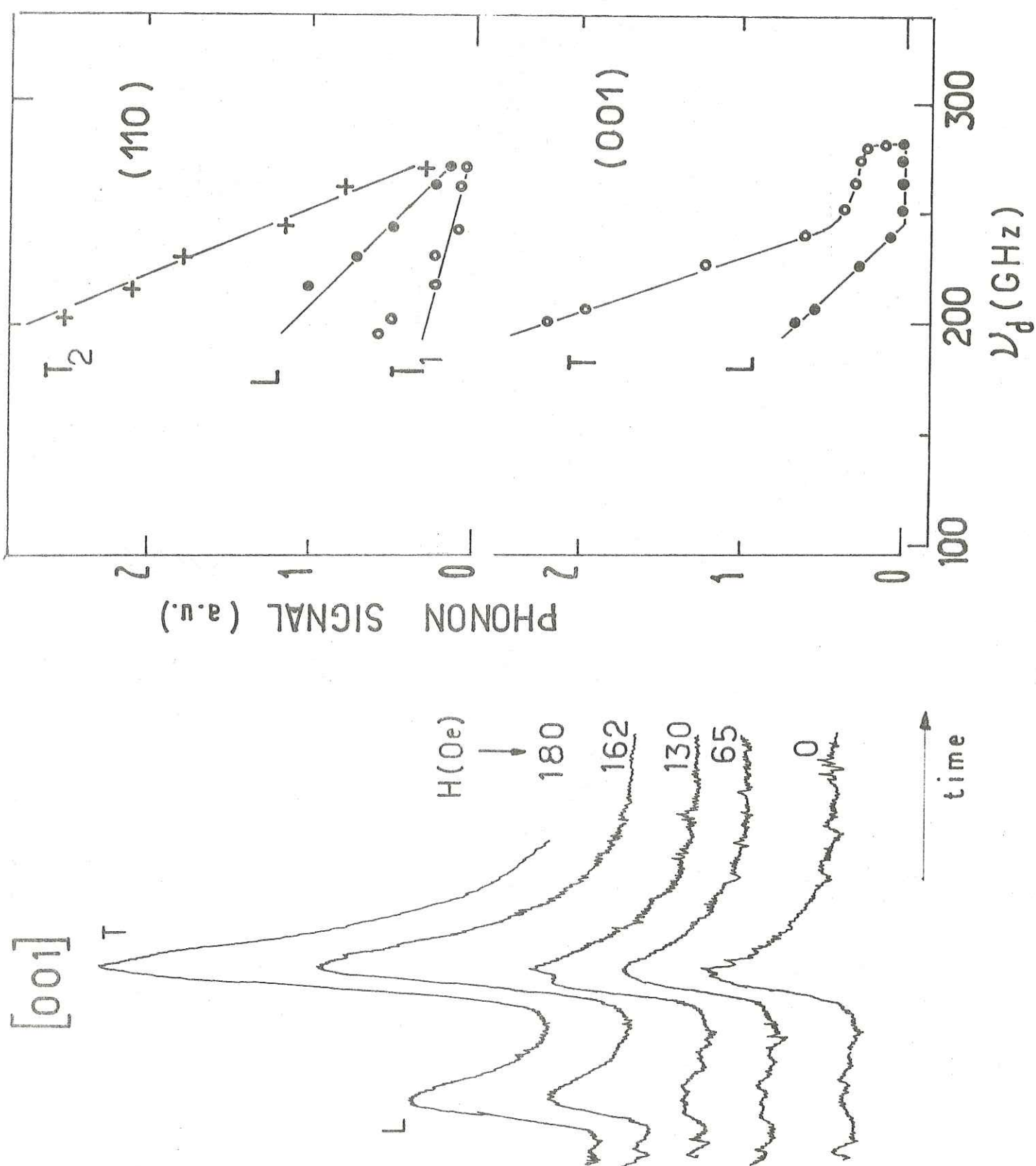


Fig. 13 : a) Phonons balistiques presque monochromatiques ($\nu_d \leq \nu < 2\Delta_{\text{Sn}}/h$) propagés selon la direction $[001]$ d'un cristal d'étain à 0.6 K pour différents champs magnétiques. Noter l'extinction du mode L à champ nul. b) Amplitudes des signaux de phonons portées directement en fonction de $\nu_d(H)$ pour différents modes de phonons. Jonction tunnel Sn-Sn.

L PHONON TRANSMISSION (dB/cm)

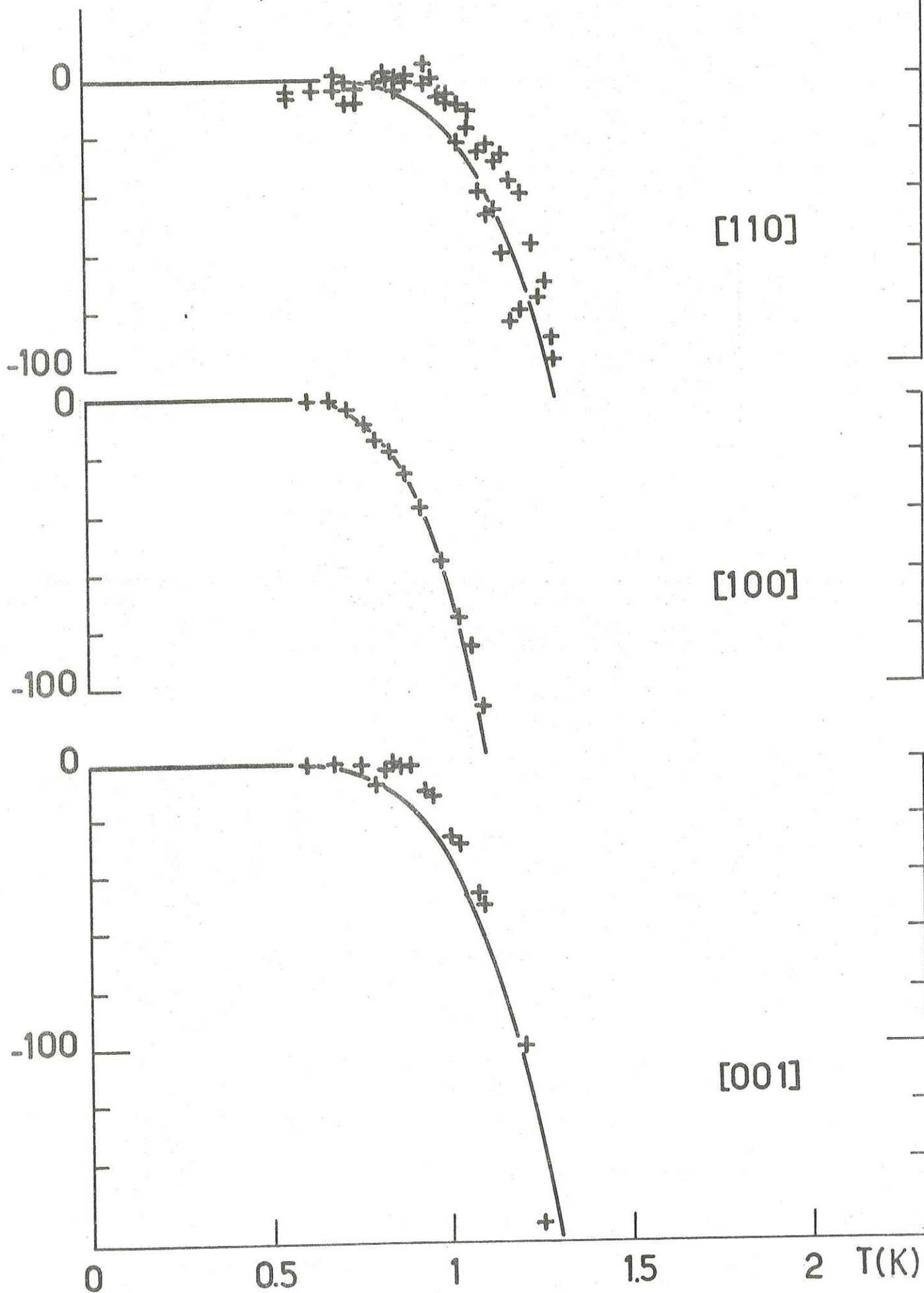


Fig. 14 : Transmission des phonons longitudinaux de fréquence $\nu \geq 150$ GHz en fonction de la température selon les trois directions principales (voir Fig.12).

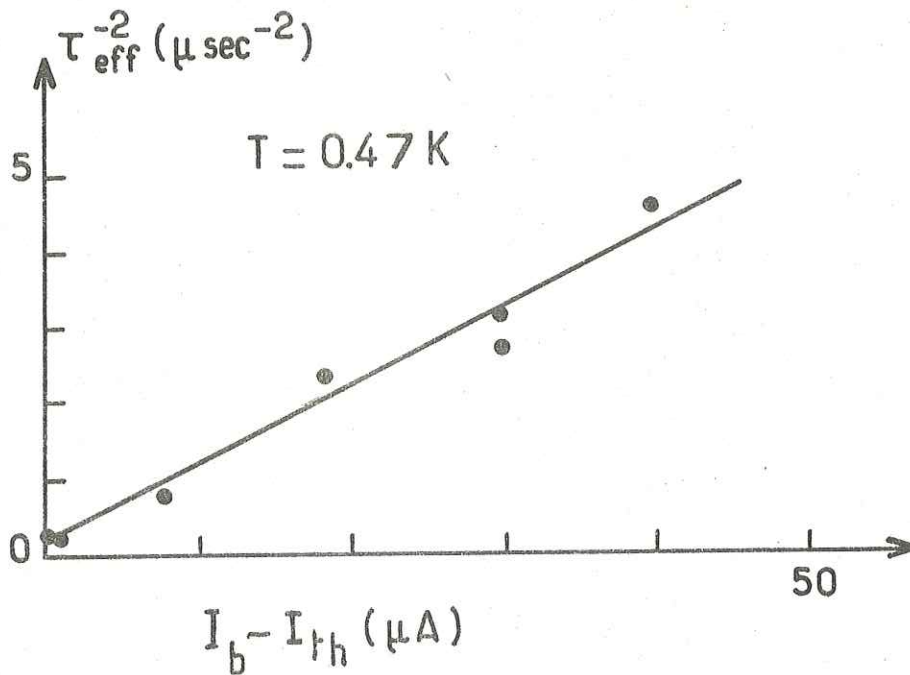


Fig. 15 : Régime de surinjection dans la jonction d'aluminium ($eV > \Delta$) :
 variation de τ_{eff}^{-2} en fonction du courant de surinjection ($I_b - I_{th}$) le long
 d'un isotherme à très basse température. I_{th} est le courant tunnel thermique
 et I_b courant tunnel au point de fonctionnement.

CHAPITRE IVPROPAGATION DES QUASIPARTICULES EN INTERACTION AVEC LES PHONONS.

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes concentrés uniquement sur les propriétés des phonons thermiques dans la limite balistique. Nous allons considérer ici le cas plus général où l'on observe le transport de l'énergie à la fois par les phonons et par les quasiparticules. Une première partie de ce chapitre expose les modèles de propagation. Nous décrirons le régime de diffusion de la chaleur à haute température par un système d'équations de la chaleur couplées. Cette formulation n'étant plus correcte à basse température, nous utiliserons un modèle reposant sur les équations de Boltzmann des phonons et des quasiparticules et qui met l'accent sur les mécanismes microscopiques responsables de la relaxation des modes de propagation. La seconde partie est consacrée à la discussion des résultats expérimentaux dans Sn photoexcité, et à leur comparaison avec ceux observés dans d'autres matériaux.

A. EQUATIONS DE TRANSPORT1° Equations de la chaleur couplées.

Nous analysons ici le transport des excitations thermiques en terme de conduction de la chaleur. A la différence de la démarche habituelle, nous allons considérer séparément la propagation des phonons et des quasiparticules en introduisant l'interaction électron-phonon sous forme d'un paramètre de couplage. Pour simplifier, décrivons chaque gaz par une température équivalente, T_e pour les quasiparticules et T_φ pour les phonons et supposons les taux de collision suffisamment élevés pour que l'hypothèse diffusive soit applicable. Ceci exclut par exemple le cas de l'étain à très basse température où nous avons vu que la propagation des phonons était balistique.

Pour chaque système, on écrit à gauche le terme usuel de l'équation de la chaleur et à droite un terme de relaxation:

$$(1) \quad \begin{aligned} (C_e \frac{\partial}{\partial t} - \kappa_e \nabla^2) \delta T_e &= - \frac{C_e \delta T_e}{\tau_e} + \frac{C_\varphi}{\tau_\varphi} \delta T_\varphi \\ (C_\varphi \frac{\partial}{\partial t} - \kappa_\varphi \nabla^2) \delta T_\varphi &= - \frac{C_\varphi \delta T_\varphi}{\tau_\varphi} + \frac{C_e}{\tau_e} \delta T_e \end{aligned}$$

Dans ces équations, C_e et κ_e (resp. C_φ et κ_φ) désignent les chaleurs spécifiques et la conductivité thermique des quasiparticules (resp. phonons). τ_e et τ_φ sont les temps de relaxation de l'énergie pour les quasiparticules et les phonons. Naturellement, les termes de relaxation s'annulent lorsque $\delta T_e = \delta T_\varphi$, ce qui implique que $C_e/\tau_e = C_\varphi/\tau_\varphi$.

Examinons la relation de dispersion des modes propres du système. Pour des ondes planes $\exp i(\omega t + \vec{q} \cdot \vec{r})$, elle se met sous la forme :

$$(2) \quad (i\omega + D_e q^2)(i\omega + D_\varphi q^2) + \left(\frac{1}{\tau_e} + \frac{1}{\tau_\varphi}\right) (i\omega + D q^2) = 0$$

où l'on a introduit les différentes constantes de diffusion :

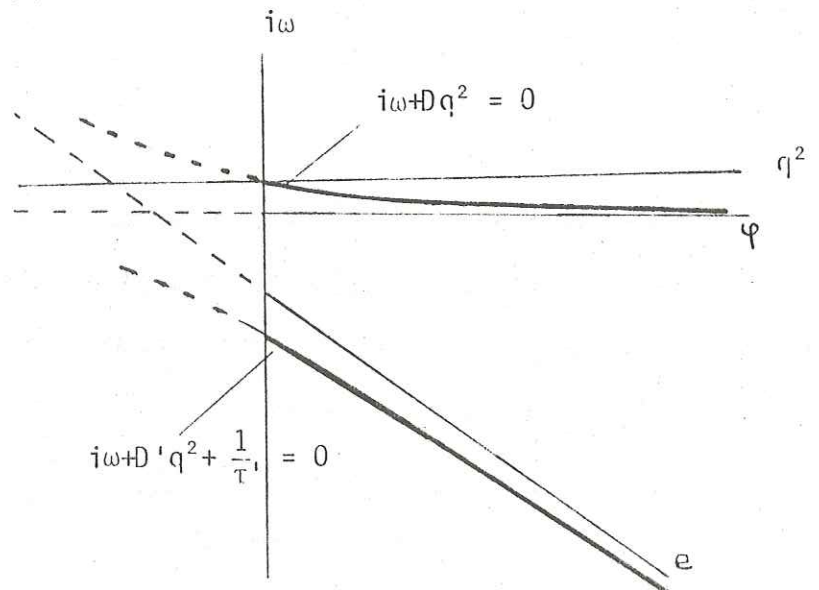
$$(2a) \quad \text{- quasiparticules : } D_e = \kappa_e / C_e$$

$$(2b) \quad \text{- phonons : } D_\varphi = \kappa_\varphi / C_\varphi$$

$$(2c) \quad \text{- Système quasiparticules + phonons : } D = (\kappa_e + \kappa_\varphi) / (C_e + C_\varphi)$$

Cette équation possède deux solutions en $\omega(q)$ purement imaginaires que l'on peut représenter sous forme graphique par les deux branches d'une hyperbole dans le plan $i\omega, q^2$ (Fig. 1). A chacune correspond un mode propre formé par un mélange de diffusion et de relaxation des deux gaz.

Fig. 1 : Courbes de dispersion des modes propres de l'équation de la chaleur. Les asymptotes représentent les modes purs de phonons (φ) et de quasiparticules (e).



Les solutions intéressantes sont les modes de grande longueur d'onde. On trouve, au premier ordre en q^2 :

- un mode d'équation de dispersion: $i\omega + Dq^2 = 0$

Ce n'est autre que la solution de l'équation de la chaleur habituelle que l'on obtient par simple addition terme à terme des équations couplées.

Il représente la diffusion du système électron-phonon parfaitement couplé.

Son existence est assortie de la condition Dq^2 petit devant $1/\tau_e$ et $1/\tau_\varphi$, c'est-à-dire : distance r plus grande que les longueurs de diffusion $\sqrt{D\tau_e}$ et $\sqrt{D\tau_\varphi}$.

- un mode amorti ayant pour équation de dispersion :

$$i\omega + D'q^2 + \frac{1}{\tau'} = 0$$

avec $D' = D_e + D_\varphi - D$ et $\frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau_e} + \frac{1}{\tau_\varphi}$. On montre facilement que la solution en r et t pour une source ponctuelle est une diffusion avec terme d'amortissement :

$$(3) \quad \delta T(r, t) = (4\pi D' t)^{-3/2} \exp - \left(\frac{r^2}{4D' t} + \frac{t}{\tau'} \right)$$

Ce mode est découplé du mode principal et n'a de chance d'être observé que si le temps d'amortissement τ' est au moins aussi long que le temps de propagation ou de façon équivalente si la longueur de diffusion $\sqrt{D'\tau'}$ dépasse r .

Chaque mode aura un caractère plus ou moins prononcé de diffusion de phonons ou de quasiparticules suivant l'importance relative de C_e et C_φ . Le tableau suivant résume les valeurs des coefficients de diffusion et d'amortissement pour deux limites pratiques.

	Mode non amorti $D = (K_e + K_\varphi) / (C_e + C_\varphi)$	Mode amorti	
		D'	τ'
$C_e \ll C_\varphi$	$\frac{C_e}{C_\varphi} D_e + D_\varphi \approx \frac{C_e}{C_\varphi} D_e^*$	D_e	τ_e
$C_\varphi \ll C_e$	D_e	$D_\varphi + \frac{C_\varphi}{C_e} D_e$	τ_φ

* D_φ est presque toujours négligeable sauf cas particulier, comme Nb impur (Appendice) ou comme celui des phonons balistiques qui n'entrent pas dans cette description.

La condition $C_e \ll C_\varphi$ est par exemple remplie dans le plomb qui a une faible température de Debye et une forte température critique (rappelons que $C_e/C_\varphi \sim \theta_D^3/T_C^2$ à $T = T_C$). Le mode non amorti (ou mode couplé haute température) contient surtout des phonons. Mais comme la conductivité de phonons est généralement bien plus petite que la conductivité d'électrons, l'énergie est portée principalement par les quasiparticules et l'on a $D = D_e C_e/C_\varphi$. Le mode découplé (qui apparaîtra à basse température) est un mode pur de quasiparticules, beaucoup plus rapide, ayant comme constante de diffusion $D' = D_e$, très supérieure à D et comme temps d'amortissement $\tau' = \tau_e$.

L'inégalité $C_\varphi \ll C_e$ représente assez bien la situation de l'aluminium ou du zinc qui ont une faible T_C et une forte θ_D . Le mode haute température (non amorti) est dominé par les quasiparticules alors que le mode découplé l'est plutôt par les phonons avec pour temps d'amortissement τ_φ . Ce mode correspond

aux phonons balistiques pour un matériau très pur.

Le cas de l'étain correspondrait en principe à la situation intermédiaire car C_e et C_φ restent du même ordre de grandeur (Kittel, 1956), sur une région importante de température (entre 1 K et 3.7 K). Nous verrons en fait qu'il sera plutôt à rapprocher du second cas.

Dans la région des très basses températures ($T \ll T_c$) où le couplage est faible ($\tau_\varphi, \tau_e \rightarrow \infty$) les deux modes tendent vers les modes diffusifs purs D_e et D_φ . La description en terme de diffusion n'étant plus correcte dans les matériaux très purs, nous allons considérer maintenant un modèle microscopique qui tient compte à la fois de la diffusion des quasiparticules sur les impuretés et de la propagation balistique des phonons. Nous ne ferons ici qu'introduire les termes de diffusion dans les équations de Boltzmann discutées par Chang et Scalapino (1977). Une théorie plus complète a été proposée récemment par Tremblay (1980).

2° Equations de Boltzmann couplées ($T \ll T_C$)

On définit en chaque point le système par les fonctions de distribution des quasiparticules (f) et des phonons (n). On supposera pour simplifier que le métal est isotrope. L'équation de Boltzmann pour les quasiparticules peut se mettre sous la forme (Aronov et Gurevitch, 1975) :

$$(4) \quad \frac{\partial f_k}{\partial t} + \vec{v}_k E \cdot \vec{\nabla}_r f_k - \vec{\nabla}_r E \cdot \vec{\nabla}_k f_k = \dot{f}_{e.p} + \dot{f}_i$$

Les termes contenant les gradients représentent respectivement l'effet de la convection et des forces interélectroniques. Nous négligerons ce dernier terme*, ce qui permet d'écrire :

$$(5a) \quad \frac{\partial f_k}{\partial t} + \vec{v}_k \cdot \vec{\nabla}_r f_k = \dot{f}_{e.p} + \dot{f}_i$$

et pour les phonons :

$$(5b) \quad \frac{\partial n_q}{\partial t} + \vec{s}_q \cdot \vec{\nabla}_r n_q = n_{e.p} + \dot{n}_\varphi + \dot{n}_i$$

Nous nous limiterons à des variations spatiales et temporelles suffisamment lentes pour que les conditions de validité $\hbar\omega \ll \Delta$ et $\hbar q \ll \Delta/v_F$ soient toujours remplies.

Dans les équations (5), \vec{v}_k et \vec{s}_q sont les vitesses respectives des quasiparticules et des phonons. Les intégrales de collisions (termes de droite) contiennent les contributions des collisions électron-phonon $\dot{f}_{e.p}$ et $\dot{n}_{e.p}$, des collisions sur les défauts ou impuretés \dot{f}_i et \dot{n}_i et les collisions inélastiques pour les phonons \dot{n}_φ (regroupant les interactions phonon-phonon et phonon-parois). L'indice k est omis des termes de collisions car nous supposons qu'ils ne dépendent que de l'énergie.

* $\vec{\nabla}_r E$ contient deux contributions $\vec{\nabla}_r(\vec{k} \cdot \vec{v}_s)$ et $\vec{\nabla}_r \Delta$ qui pourront être négligées à basse température (vitesse superfluide $v_s \rightarrow 0$) et sous faible injection ($\Delta \approx \Delta_0$)

Nous allons transformer ce système d'équations en utilisant des variables macroscopiques :

densité de quasiparticules: $N_{qp}(r,t) = 2 \sum_k f_k(r,E) = 4 N_0 \int_{2\Delta}^{\infty} \rho(E) dE f(E,r,t)$

densité de phonons $\Omega \geq 2\Delta$: $N_{>}(r,t) = N \int_{2\Delta}^{\infty} F(\Omega) d\Omega n(\Omega,r,t)$

densité spectrale de phonons $\Omega < 2\Delta$: $N_{<}(r,t,\Omega) = N F(\Omega) n(\Omega,r,t)$

$F(\Omega)$ est la densité d'états des phonons.

Nous supposons dans ce qui suit, que les taux de création de phonons et de quasiparticules sont suffisamment faibles pour que les écarts à l'équilibre des densités δN_{qp} , $\delta N_{>}$ et $\delta N_{<}(\Omega)$ restent petits devant les populations thermiques (hypothèse de linéarisation).

a) Quasiparticules + phonons $\Omega > 2\Delta$ (mode mixte)

Ce système interagit peu avec les phonons de basses fréquences. On obtient les équations couplées liant δN_{qp} à $\delta N_{>}$ en intégrant les équations (5) sur les énergies. Les termes de collision électron-phonon s'obtiennent à l'aide des équations (17) et (19) du chapitre I. On considère ici leur forme linéaire. L'intégration sur les énergies donne :

$$(6) \quad \begin{aligned} 4N_0 \int_{\Delta}^{\infty} \rho(E) dE \delta \dot{f}_{ep}(E) &= -2 \frac{\delta N_{qp}}{\tau_r} + 2 \frac{\delta N_{>}}{\tau_{PB}} \\ N \int_{2\Delta}^{\infty} F(\Omega) \delta \dot{n}_{ep}(\Omega) &= -\frac{\delta N_{>}}{\tau_{PB}} + \frac{\delta N_{qp}}{\tau_r} - \frac{\delta N_{>}}{\tau_{qp}} + \int_{2\Delta}^{\infty} \delta S(\Omega) d\Omega \end{aligned}$$

Les différents τ introduits ci-dessus sont des valeurs moyennes calculées sur $\delta f(E)$ et $\delta n(\Omega)$.

$$\frac{1}{\tau_r} = \frac{4N_0}{\delta N_{qp}} \int_{\Delta}^{\infty} dE \rho(E) \delta f(E) \tau_r^{-1}(E) \quad \text{Recombinaison}$$

$$(7) \quad \frac{1}{\tau_{PB}} = \frac{N}{\delta N_{>}} \int_{2\Delta}^{\infty} d\Omega F(\Omega) \delta n(\Omega) \tau_{PB}^{-1}(\Omega) \quad \text{Dissociation de paires}$$

$$\frac{1}{\tau_{qp}} = \frac{N}{\delta N_{>}} \int_{2\Delta}^{\infty} d\Omega F(\Omega) n(\Omega) \tau_{qp}^{-1}(\Omega) \quad \text{Absorption par les quasiparticules.}$$

Le terme $\delta S(\Omega)$ représente l'émission de phonons d'énergie Ω par relaxation de quasiparticules :

$$(8) \quad \delta S(\Omega) = \frac{8\pi N_0}{h} K F(\Omega) \int_{\Delta}^{\infty} dE \rho \rho' \left(1 - \frac{\Delta^2}{EE'}\right) \{ \delta f'(1+n-f) - \delta f(n+f') \} \quad E' = E + \Omega$$

où f , f' et n sont les abréviations pour $f(E)$, $f(E')$ et $n(\Omega)$, valeurs des distributions à l'équilibre thermique.

Nous négligerons la contribution de l'intégrale de $\delta S(\Omega)$ car seules les quasiparticules d'énergie $E \geq 3\Delta$ peuvent émettre des phonons 2Δ par relaxation, et la densité de ces quasiparticules est très faible à basse température.

Pour transformer les membres de gauche des équations de Boltzmann, introduisons la constante de diffusion moyenne des quasiparticules ; on écrit :

$$\sum_{\mathbf{k}} \vec{V}_{\mathbf{k}} \cdot \vec{\nabla}_{\mathbf{r}} \delta f_{\mathbf{k}} = - D_e \nabla_{\mathbf{r}}^2 \delta N_{qp} = - \frac{1}{3} \langle v_{\mathbf{k}}^2 \rangle \tau_c \nabla_{\mathbf{r}}^2 \delta N_{qp}$$

où τ_c est le temps de collision des quasiparticules. Pour l'étain, celui-ci est dominé par les collisions sur les impuretés et nous écrirons simplement :

$$(9) \quad D_e = \frac{1}{3} \alpha v_F l_i$$

où $\alpha = (2k_B T / \pi \Delta)^{1/2}$ est un coefficient (inférieur à 1) lié à la vitesse thermique des quasiparticules.

En choisissant $v_F = 7.10^7$ cm/sec, valeur tirée des expériences d'effet Tomasch (Tomasch, 1966), $l_i \approx 10^{-2}$ cm et $T = 1$ K, on trouve pour Sn :
 $D_e \approx 70\,000$ cm²/sec. La constante de diffusion des phonons 2Δ , est beaucoup plus faible (≈ 1 cm²/sec), car le taux de collision $\approx \tau_{pB}$ est de l'ordre de 10^{-10} sec. Nous la négligerons par la suite.

Les équations de propagations peuvent maintenant être explicitées. Nous introduisons des termes sources $I(r,t)$ et $J_{>}(r,t)$ pour les quasiparticules et les phonons $\Omega \geq 2\Delta$ et nous désignons par $\tau_{\varphi\varphi}$ le temps de relaxation moyen des phonons 2Δ dû aux processus phonon-phonon. On obtient :

$$(10) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} - D_e \nabla_r^2\right) \delta N_{qp} = - 2 \frac{\delta N_{qp}}{\tau_r} + 2 \frac{\delta N_{>}}{\tau_{PB}} + I(r,t)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta N_{>} = \frac{\delta N_{qp}}{\tau_r} - \delta N_{>} \left(\frac{1}{\tau_{PB}} + \frac{1}{\tau_{qp}} + \frac{1}{\tau_{\varphi\varphi}} \right) + J_{>}(r,t)$$

Remarque : L'hypothèse ^{de linéarisation} ne se justifierait plus dans le régime de sur-injection, c'est-à-dire lorsque $\delta N_{>}$ et δN_{qp} dépassent les populations thermiques. Il faut dans ce cas effectuer la sommation des équations (5) sur les énergies en utilisant les populations réelles f et n . Les expressions que l'on obtient sont des équations non linéaires similaires aux équations de Rothwarf et Taylor (1967) mais complétées par le terme de diffusion des quasiparticules :

$$(11) \quad \left(\frac{\partial}{\partial t} - D_e \nabla_r^2\right) N_{qp} = - 2R N_{qp}^2 + 2B N_{>} + I$$

$$\frac{\partial}{\partial t} N_{>} = R N_{qp}^2 - B N_{>} + \delta S_{>} + J_{>} \quad \text{où } \delta S_{>} = \int_{2\Delta}^{\infty} \delta S(\Omega) d\Omega$$

Les termes $R N_{qp}^2$ et $B N_{>}$ sont les facteurs de décroissance respectifs de N_{qp} (recombinaison) et de $N_{>}$ (cassure de paire). La dépendance quadratique du premier signifie que la recombinaison de deux particules est une réaction binaire. R et B dépendent des distributions f et n et peuvent s'exprimer sous forme de moyennes sur les (paires de) quasiparticules et sur les phonons :

$$(12) \quad R = \left\langle \frac{\pi}{4\hbar N_0} K F(E+E') \left(1 + \frac{\Delta^2}{EE'}\right) (1+n)(E+E') \right\rangle_{E,E'}$$

$$B = \left\langle \frac{4N_0\pi}{N\hbar} K \int_{\Delta}^{\Omega-\Delta} dE_{\rho\rho'} \left(1 + \frac{\Delta^2}{EE'}\right) (1-f)(1-f') \right\rangle_{\Omega} \quad E' = \Omega - E$$

Ce sont des constantes si les distributions sont pointues au voisinage du gap : $R = 2\pi b \Delta^2 / \hbar N_0$ et $B = 1/\tau_{PB}(2\Delta)$.

Le système (10) présente une grande similitude du point de vue formel avec les équations de la chaleur couplées du paragraphe précédent. Mais ici les gaz en interaction sont les quasiparticules et les phonons $\Omega > 2\Delta$. Les phonons de basse énergie n'interviennent pas explicitement. Nous allons comme précédemment chercher les solutions par transformation de Fourier en prenant l'hypothèse de sources ponctuelles. Nous considérons à la fois une source de quasiparticules $I = I_0 \delta^3(r) \delta(t)$ et une source $J_0 = J_0^> \delta^3(r) \delta(t)$ de phonons $\Omega > 2\Delta$.

L'équation caractéristique pour les solutions en $\exp i(\omega t + \mathbf{q} \cdot \mathbf{r})$ s'écrit, en posant $s = i\omega$:

$$(13) \quad (s + D_e q^2 + \frac{2}{\tau_r}) (s + \frac{1}{\tau_{PB}} + \frac{1}{\tau_{qp}^>} + \frac{1}{\tau_{\psi\psi}}) = \frac{2}{\tau_r \tau_{PB}}$$

Cette équation a deux solutions $-s_1$ et $-s_2$ qui correspondent aux deux modes propres de propagation.

Les composantes de Fourier $\delta N_{qp}(q, \omega)$ et $\delta N_>(q, \omega)$ s'obtiennent immédiatement en fonction de s_1 et s_2 :

$$\begin{aligned} \delta N_{qp}(q, \omega) &= \frac{A(q)}{i\omega + s_1} + \frac{I_0 - A(q)}{i\omega + s_2} \\ \delta N_>(q, \omega) &= \frac{C(q)}{i\omega + s_1} + \frac{J_0^> - C(q)}{i\omega + s_2} \end{aligned} \quad (14)$$

$$\begin{aligned} A(q) &= \frac{1}{s_2 - s_1} \left[I_0 \left(\frac{1}{\tau_{PB}} + \frac{1}{\tau_{qp}^>} + \frac{1}{\tau_{\psi\psi}} - s_1 \right) + 2 \frac{J_0^>}{\tau_{PB}} \right] \\ C(q) &= \frac{1}{s_2 - s_1} \left[\frac{I_0}{\tau_r} + \left(s_2 - \frac{1}{\tau_{PB}} - \frac{1}{\tau_{qp}^>} - \frac{1}{\tau_{\psi\psi}} \right) J_0^> \right] \end{aligned}$$

En supposant $\tau_{PB} \ll \tau_{\psi\psi}$, τ_r et $\tau_{qp}^>$, ce qui est réalisé pour l'étain à basse température, on obtient, au premier ordre en τ_{PB} et en q^2 :

$$\begin{aligned}
 s_1 &= 2 \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} \left(\frac{1}{\tau_{qp}^>} + \frac{1}{\tau_{qp}^<} \right) + D_e q^2 \\
 s_2 &= \frac{1}{\tau_{PB}} + 2 \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} D_e q^2 \\
 (15) \quad A(q) &\approx I_0 + 2J_0^> \\
 C(q) &= \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} (I_0 + 2J_0^>)
 \end{aligned}$$

Ces simplifications permettent de préciser les modes propres du système. Ce sont des modes diffusifs amortis, d'équations caractéristiques $i\omega + s_2 = 0$ et $i\omega + s_1 = 0$. (Tableau ci-dessous).

Mode	Constante de diffusion	Temps d'amortissement
$\delta N_> - \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} \delta N_{qp}$	$2 \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} D_e \ll D_e$	$\sim \tau_{PB}$
$\delta N_{qp} + 2\delta N_>$ (mode mixte)	$\sim D_e$	$\sim \frac{\tau_r}{2\tau_{PB}} \left(\frac{1}{\tau_{qp}^<} + \frac{1}{\tau_{qp}^>} \right)^{-1}$

Le premier mode s'amortit en un temps très bref (τ_{PB}). C'est le temps de thermalisation interne du système quasiparticules + phonons 2Δ . De l'ordre de 10^{-10} sec., il n'est pas observable expérimentalement. Le second est un mode mixte dans lequel quasiparticules et phonons 2Δ échangent un quantum d'énergie 2Δ au cours des processus recombinaison-dissociation de paires (pour lesquels la quantité $\delta N_{qp} + 2\delta N_>$ est conservative). Le système se propage avec une constante de diffusion égale à celles des quasiparticules et ne s'amortit qu'au bout d'un temps très long égal au temps de recombinaison moyen multiplié

par le facteur de recyclage des phonons $\Omega \geq 2\Delta$. Celui-ci mesure la probabilité pour qu'un phonon de recombinaison restitue deux quasiparticules par dissociation de paires (taux égal à $1/\tau_{PB}$) avant de perdre son énergie par des processus inélastiques ne créant aucune quasiparticule (taux égal à $1/\tau_{\varphi\varphi} + 1/\tau_{\varphi qp}^{\rightarrow}$). Il faut compter non seulement les collisions anharmoniques mais également la diffusion sur les quasiparticules thermiques qui peut devenir importante à haute température. A très basse température, le facteur de piégeage est simplement $\tau_{\varphi\varphi} / \tau_{PB}$ et peut atteindre théoriquement 10^4 dans Sn, si l'on ne tient pas compte des processus de dégradation d'ordre supérieur (comme par exemple la recombinaison de deux quasiparticules avec émission de deux phonons d'énergie inférieure à 2Δ).

On trouve facilement la solution en r et t par transformation de Fourier inverse des solutions en ω, q . Nous obtenons pour un échantillon infini :

$$(16) \quad \begin{aligned} \delta N_{qp}(r,t) &= (I_0 + 2J_0^{\rightarrow}) F(r,t) \exp - \frac{2t}{\tau_r} \left(\frac{1}{\tau_{\varphi\varphi}} + \frac{1}{\tau_{\varphi qp}^{\rightarrow}} \right) \tau_{PB} \\ \delta N_{\rightarrow}(r,t) &= \frac{\tau_{PB}}{\tau_r} \delta N_{qp}(r,t) \end{aligned}$$

$$\text{où } F(r,t) = (4\pi D_e t)^{-3/2} \exp - r^2/4D_e t$$

Nous voyons clairement la similitude avec le mode amorti de quasiparticules que nous avons trouvé à l'aide des équations de la chaleur couplées. On a pu ici préciser la nature de ce mode et calculer le temps de relaxation du nombre de quasiparticules.

Il n'y a par contre aucun lien entre les modes de propagation des phonons donnés par ces deux modèles.

b) Phonons de basses fréquences $\Omega < 2\Delta$

Ces phonons sont caractérisés, à basse température par des durées de vie extrêmement longues et une propagation balistique.

Les observations expérimentales du chapitre III ont montré que les signaux de phonons balistiques ne présentent jamais d'élargissement diffusif, même à haute température. Les collisions avec les quasiparticules sont purement inélastiques. On décrira donc le transport des phonons de basses fréquences par une propagation balistique avec absorption.

L'équation de propagation s'obtient par multiplication de l'équation (5b) par $NF(\Omega)$. Les termes de recombinaison et de cassure de paires contenus dans \dot{n}_{ep} n'interviennent pas. On obtient :

$$(17) \quad \frac{\partial}{\partial t} \delta N_{<}(\Omega) + NF(\Omega) \vec{s}_q \cdot \vec{\nabla} n_q = - \frac{\delta N_{<}(\Omega)}{\tau_{qp}(\Omega)} + \delta S(\Omega) + J_{<}(\Omega)$$

A droite, figure le taux d'absorption $\tau_{qp}^{-1}(\Omega)$ par les quasiparticules et le terme source de phonons de relaxation $\delta S(\Omega)$ défini par Equ. 8. $J_{<}(\Omega)$ est le taux d'injection (terme source) que nous allons prendre égal à une fonction δ :

$$J_{<}(\Omega) = J_0^{<}(\Omega) \delta^3(r) \delta t$$

Le terme de collision anharmonique, négligé dans (17) se traduirait simplement par un processus d'absorption additionnel.

L'équation (17) décrit l'évolution de la population de phonons émis à la fois par une source localisée $J_{<}(\Omega)$ et une source répartie dans tout l'espace $\delta S(\Omega, r, t)$, se propageant avec une vitesse s et un libre parcours moyen

$$\Lambda(\Omega) = s \tau_{qp}(\Omega)$$

La solution s'écrit à l'aide de la fonction de Green $G(\vec{r}-\vec{r}', t-t')$ définie comme la réponse à une impulsion unité.

$$G(\vec{r}-\vec{r}', t-t') = \frac{1}{4\pi|\vec{r}-\vec{r}'|^2} \delta(|\vec{r}-\vec{r}'| - s(t-t')) \exp \left[-\frac{t-t'}{\tau_{qp}(\Omega)} \right] \quad t > t'$$

$$= 0 \quad t < t'$$

On a $\delta N_{<}(r, t) = \int d^3r dt' G(\vec{r}-\vec{r}', t-t') \left[J_{<}(\vec{r}', t') + \delta S(\vec{r}', t') \right]$

et en substituant la forme explicite de G , on obtient :

$$(18) \quad \left\{ \begin{aligned} \delta N_{<}(\vec{r}, t, \Omega) &= \frac{1}{4\pi r^2} J_0^<(\Omega) \delta(\vec{r}-s\vec{t}) e^{-\frac{r}{\Lambda(\Omega)}} \\ &+ \frac{1}{4\pi s} \int \frac{d^3\vec{r}'}{|\vec{r}-\vec{r}'|^2} e^{-\frac{|\vec{r}-\vec{r}'|}{\Lambda(\Omega)}} \delta S(\vec{r}', t - \frac{|\vec{r}-\vec{r}'|}{s}, \Omega) \end{aligned} \right.$$

Le premier terme donne la composante balistique directe et le second donne la contribution des phonons de relaxation émis par les quasiparticules.

B. RESULTATS DES EXPERIENCES

B.1 Dispositif experimental

Excitations du type quasiparticules ou du type phonons sont maintenant provoquées par une lumière laser tombant directement sur la surface du cristal, sans couche intermédiaire thermalisatrice. Par ailleurs, les bolomètres et jonctions tunnel isolées par une couche de SiO sont en principe impropres à la détection des signaux de quasiparticules ; le détecteur sera donc une jonction formée directement par le cristal et une contre-électrode d'étain évaporée (Chap. II §B). De plus, en choisissant une direction de propagation de faible gap, soit $[001]$ (voir Chap. III, § IV), nous excluons de la détection tout phonon $\Omega < 2\Delta_{Sn}$. Seuls les phonons associés au mode mixte quasiparticules + phonons $\Omega \geq 2\Delta_{Sn}$ peuvent être détectés en champ magnétique nul.

L'observation de tels phonons, qu'ils soient issus de la relaxation (bremstrahlung) des quasiparticules ou directement du point d'émission, devient par contre possible par l'application d'un champ strictement parallèle à la jonction. Celui-ci ne pénétrant que sur une profondeur $\lesssim 1000 \text{ \AA}$ réduit le seuil de détection sans affecter le milieu de transmission. La jonction, dans ces conditions, sera sensible aux quasiparticules et à tout phonon $\Omega \geq h\nu_{\text{det}}(H)$.

Pour la mesure des temps de vol, il est nécessaire de repérer l'instant initial, celui de la photoexcitation. La méthode la plus précise consiste à dévier le faisceau laser vers la jonction détectrice, après atténuation convenable, ce qui se fait grâce au dispositif de double fibre optique représentée sur la Figure 4 du Chapitre III. On connaît ainsi, non seulement l'instant d'émission, mais encore la réponse globale du système détecteur, sensibilité incluse.

B2 Observation des divers modes de propagation

Devant la variété des signaux à discriminer (étant entendu que le régime non-linéaire est repoussé au Chap. V), nous devons faire appel à tous les facteurs température, seuil de détection $h\nu_{\text{det}}$ et bien sûr, analyse par temps de vol.

La Figure 2 se rapporte à un cristal de 1,49 mm de long selon $[001]$, examiné entre 0.7 et 2.9 K. Pour chaque température, on distingue le signal détecté en champ nul (—) de celui à $H = 175$ Oe (courbe ---) qui correspond à un seuil de détection ≈ 90 % du gap du cristal selon $[001]$. On constate sur les courbes haute température que la sensibilité au mode mixte dépend très peu de la variation du seuil. La différence introduite ne se manifeste qu'à basse température, sous la forme d'une traînée de phonons de relaxation de plus en plus importante, jusqu'au point où apparaissent nettement les pics balistiques L et T, notamment à 0.7 K.

Le mode mixte, le seul détecté à $H = 0$ nous apparaît comme doté d'une vitesse de propagation très supérieure à celle des phonons, avec des temps d'arrivée de quelques dizaines de nanosecondes. Mais nous verrons dans la discussion à suivre que ses caractéristiques sont largement dépendantes de la réponse du système. L'aspect diffusif de ce mode n'a été reconnu que tardivement, grâce à la déconvolution de la réponse impulsionnelle (thèse de 3ème cycle de Hervé Guyot, 1980).

Pour avoir une idée plus complète de la quantité de phonons "infra-gap" ($\Omega < 2\Delta$), l'on peut continuer d'explorer cette gamme de fréquences grâce à la modulation magnétique du seuil de détection, ou à la limite, passer à la détection bolométrique (Fig. 3). Même à température relativement élevée, le signal des quasiparticules apparaît convenablement alourdi d'une traînée de phonons de basse fréquence (les signaux balistiques issus du point de photoexcitation sont à peine perceptibles, contrairement à ce qui est produit par un émetteur

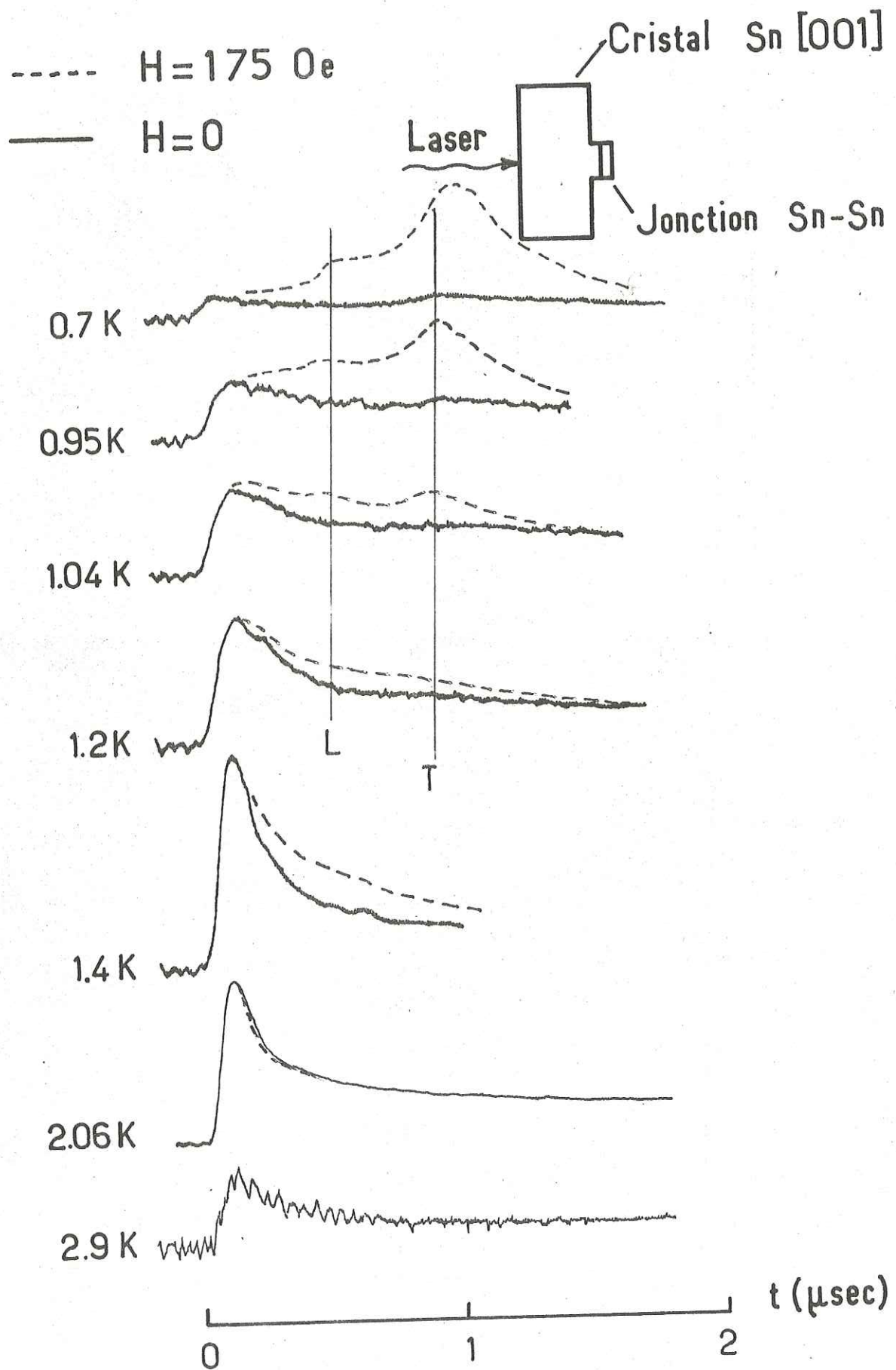


Fig. 2 : Signaux de propagation dans un cristal d'étain à différentes températures. Longueur 1.49 mm. Photoexcitation. Détection par Jonction tunnel sans SiO. Le pic principal (traits pleins) est associé au mode mixte quasiparticules + phonons 2Δ . La réduction du seuil de détection par un champ magnétique (traits pointillés $h\nu/2\Delta_{\text{Sn}} \sim 0.9$) fait apparaître la contribution supplémentaire des phonons infra-gap. Puissance laser $< 1 \text{ W}$.

Sn [001]
 $T = 1.4 \text{ K}$
 $d = 1.49 \text{ mm}$

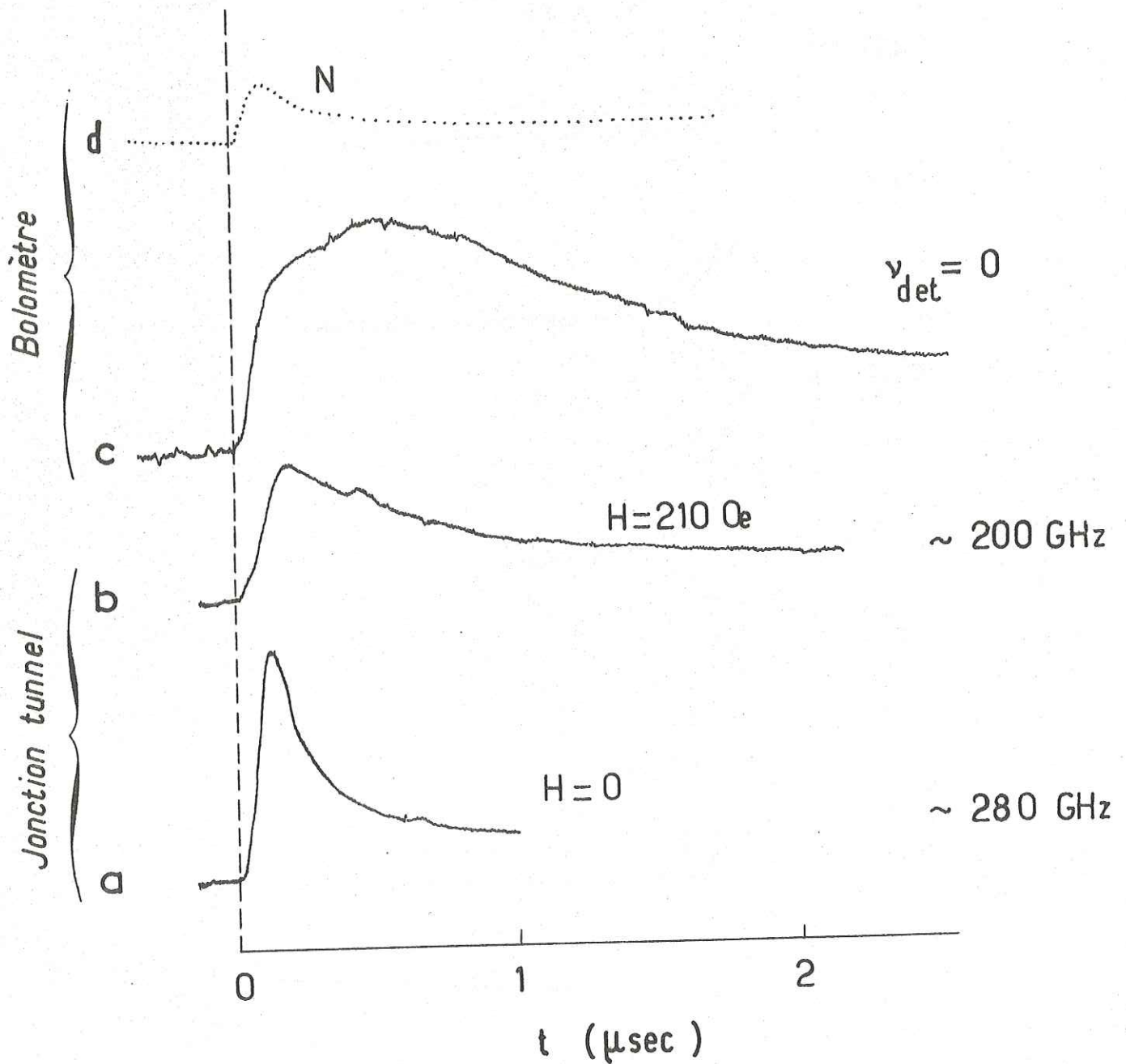


Fig. 3 : Signaux détectés à 1.4 K suivant la valeur du seuil de détection : a) Jonction tunnel en champ magnétique nul ($v_{\text{det}} \approx 280 \text{ GHz}$), b) Jonction dans un champ de 210 Oe ($v_{\text{det}} \approx 200 \text{ GHz}$), c) Bolomètre supraconducteur en aluminium ($v_{\text{det}} \approx 0$). En pointillés (d) signal bolométrique dans l'état normal ($H \gtrsim H_C$).

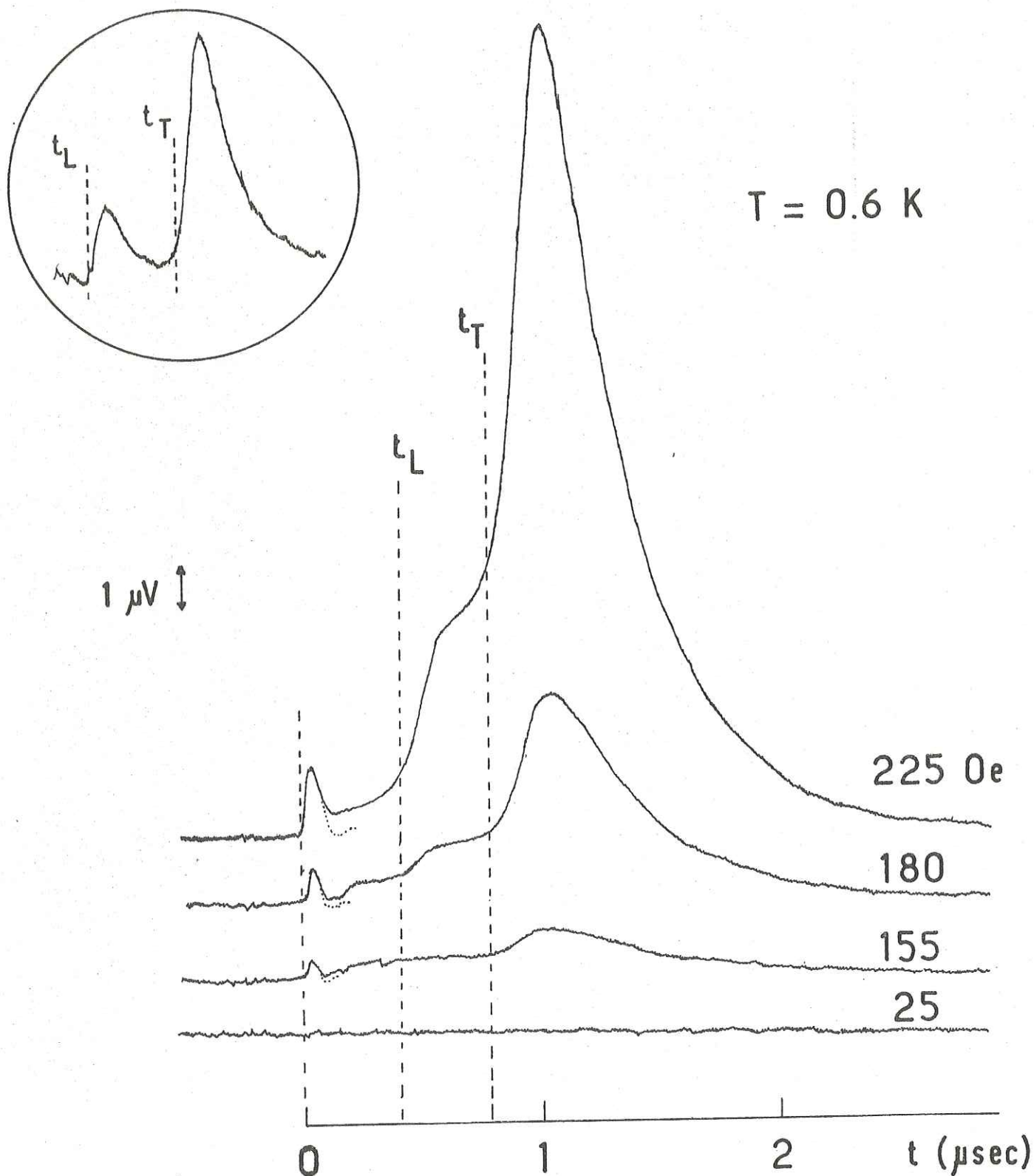


Fig. 4 : Signaux détectés à 0.6 K pour différents champs magnétiques. De bas en haut $\nu_{det}(H)$ vaut respectivement 280, 230, 215 et 200 GHz. Pour comparaison, $2\Delta_{SN}/h=240$ GHz. Photoexcitation. t_L et t_T sont les temps d'arrivée théoriques des phonons balistiques. En médaillon, pics de phonons produits par un émetteur de chaleur (extraits de Fig. III 13). Noter l'absence du mode mixte et l'apparition, en champ $H \neq 0$ du pic additionnel à $t=0$ qui subsiste même si la jonction est polarisée à courant nul (pointillés).

de chaleur. Dans le cas bolométrique, le signal détecté est une large bosse dont le sommet coïncide approximativement, quelle que soit la longueur d'échantillon entre 1 et 8 mm, avec le temps de transit des phonons balistiques. Le passage à l'état normal (courbe en pointillé, Fig. 3), en absorbant la totalité des phonons non efficacement couplés aux électrons, restitue un type de propagation très voisin du "mode mixte" (même front de montée, même largeur de signal). Ces résultats dans l'état normal sont détaillés par ailleurs, (H. Guyot, 1980).

Enfin, à la température la plus basse atteinte (Fig. 4), les phonons infra-gap se découplent totalement des électrons et atteignent le détecteur sans atténuation. La variation considérable d'amplitude en fonction du champ due à l'ouverture de la fenêtre $h\nu_{\text{det}}(H) \leq \Omega < 2\Delta_{\text{Sn}}$, est à rapprocher des Figs. III 9 et III 13 bien qu'il s'agisse maintenant de photoexcitation. L'avance des fronts de montée des pics de phonons L et T et leur aspect arrondi au départ (le cas de l'émetteur de chaleur est figuré en médaillon de la Fig. 4) indiquent que des phonons hâtifs proviennent de l'intérieur de l'échantillon et non pas du point de départ.

Nous passons très brièvement sur deux autres points tout-à-fait remarquables de la Fig. 4 :

- absence presque totale, à faible champ magnétique ($H = 25 \text{ Oe}$) et basse température (comparer avec la Fig. 2) du signal de quasiparticules. Fait d'autant plus inattendu que la jonction tunnel, avec une forte résistance dynamique et une réponse lente, est extrêmement sensible dans ces conditions :
- émergence, en champ non nul, d'un pic additionnel très fin (dénomé Bernoulli pour des raisons présentées plus loin), dont le temps d'arrivée ne se distingue pas de l'impulsion laser frappant directement le détecteur. Ce signal a aussi la particularité d'être indépendant de la polarisation de la jonction (le tracé effectué en pointillé correspond à un courant de polarisation nul).

B.3. Discussion

Dans cette partie, nous cherchons à relier dans leurs grandes lignes les données expérimentales du § B2 à la théorie développée dans la section A, ou éventuellement dans les chapitres antérieurs. Nous ne discutons que les faits majeurs, certains d'entre eux restant encore sans solution définitive.

3a. Découplage des quasiparticules et des phonons BF (basse fréquence).

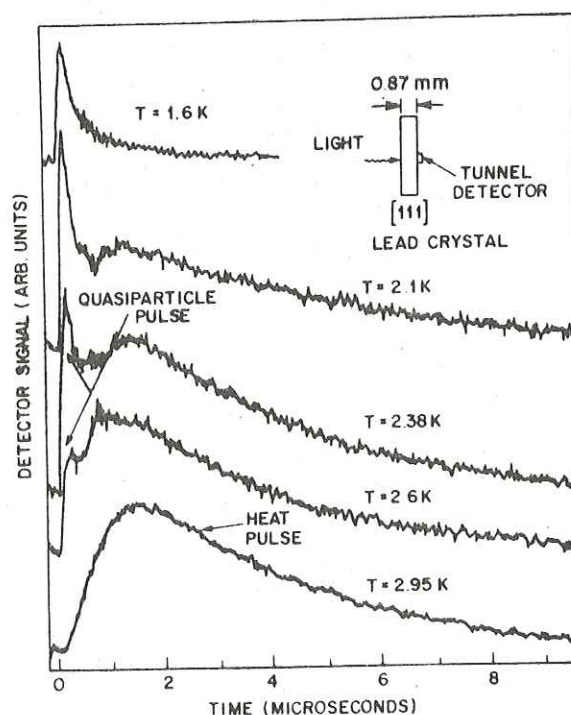
Cas du plomb. Cas de l'étain. Notre interprétation.

Le plomb se distingue par de fortes densités d'états de phonons et un couplage électron-phonon beaucoup plus fort que dans l'étain par exemple. Dans la classification du tableau de la page 75, nous sommes sur la ligne $C_e \ll C_\varphi$, où sont prévus un mode non amorti de coefficient $D = C_e D_e / C_\varphi$ et un mode amorti de coefficient $D' = D_e$ avec un temps d'amortissement $\tau' = \tau_e$.

Les observations de Narayanamurti et al (1978) dans une configuration expérimentale voisine de la nôtre, mais avec une JTS de plomb formée directement sur le plomb, se résument de la façon suivante (Fig. 5) :

Fig. 5 : Dépendance en température des signaux de propagation détectés dans le plomb. Jonction tunnel détectrice. Le pic de quasiparticules se découple de l'impulsion de chaleur (heat pulse) au-dessous de 2.6 K.

d'après Narayanamurti et al. Phys. Rev. B 18,6041 (1978)



IV QUASIPARTIQUES

- à haute température, une diffusion simple (notée heat pulse) avec pour coefficient $D = \frac{1}{3} \bar{v}^2 (\tau_r/2) C_e/C_\varphi$. Ce sont les mécanismes de recombinaison, plus fréquents que les collisions sur les impuretés qui dominent dans la diffusion (au moins pour l'échantillon très pur qui a été sélectionné). Il en résulte une forte dépendance en température : τ_r décroît de deux ordres de grandeur lorsqu'on passe de 3 à 7.2 K. A noter que D varie plus lentement à cause de la variation adverse de C_e et \bar{v}^2 (vitesse thermique des quasiparticules: v).
- au dessous de 2.6 K, le "quasiparticule pulse", qui n'est autre que notre mode mixte, commence d'apparaître. Par son temps de vol, il se détache nettement du mode précédent. Son coefficient de diffusion D_e est plus grand que D' d'un facteur C_φ/C_e (≈ 50 à 3.5 K par exemple).

Le pic des quasiparticules est exponentiellement amorti avec un temps caractéristique τ' donné dans la théorie microscopique (cf. Eq. 16) par :

$$\tau' = \tau_{PB}^{-1} \left[\tau_{\varphi\varphi}^{-1} + (\tau_{\varphi\varphi}^>)^{-1} \right]^{-1} \tau_r/2$$

Le temps τ' mesuré par les auteurs (63 nsec à 2.1 K) cités ci-dessus ($\approx 10 \tau_r$) leur permet de déduire une valeur approximative de $\tau_{\varphi\varphi} \lesssim 1$ nsec pour des phonons d'énergie résonnante avec le gap.

Dans le cas de l'étain, le mode haute température dépend relativement peu de la température entre 1.5 K et 3.7 K (voir Figure 2) conformément aux prévisions car C_e/C_φ reste $\approx 3/2$ dans cette gamme de température, tandis que dans le coefficient D_e , ce sont les collisions sur les impuretés qui dominent.

Dans ce mode purement diffusif, les différentes excitations sont à l'équilibre thermique : ainsi l'on observe des signaux quasiment identiques, à l'am-

tude près, avec une jonction tunnel sous champ magnétique ou simplement avec un bolomètre (ces enregistrements ne sont pas montrés). Remarquons aussi qu'aucun accident ne se produit autour de T_c (3.72 K) et que l'apparition de la diffusion électron-phonon se traduit par un élargissement progressif des signaux au-delà de ≈ 4 K (thèse Guyot, 1980).

Toujours dans l'étain, mais à plus basse température, l'expérience n'indique pas l'affaiblissement rapide de D , en $\exp(-\Delta/k_B T)$, qu'impliquerait la survivance du mode de chaleur purement diffusif. C'est au contraire au découplage du mode mixte (quasiparticules + phonons à 2Δ) des phonons BF que l'on assiste (Fig. 2) et ici, en contraste avec le cas du plomb, le mode mixte n'est pas amorti de façon mesurable - ceci parce que τ_r et $\tau_{\varphi\varphi}$ sont toujours grands (aux températures où τ_r^{-1} deviendrait appréciable, c'est la part des phonons qui devient négligeable et la distinction entre mode mixte et mode de chaleur devient impossible).

Quand au mode de phonons BF, nous savons que contrairement au cas du plomb, il peut contenir dans l'étain des fréquences qui s'étendent jusqu'au gap, tout en gardant leur nature balistique. La description de cette propagation ne peut donc rentrer dans le cadre des équations de la chaleur couplées, mais peut être faite à partir de la seconde théorie (§ A 2).

Nous devons admettre que la discussion qui précède n'éclaire pas complètement la variété des phénomènes relatés, et qu'une meilleure approche mathématique devrait pouvoir être trouvée.

3 b. Dépendance des temps de transit sur les longueurs de propagation. Etat supraconducteur , état normal.

Ainsi qu'on vient de le voir, la décroissance des amplitudes avec la distance ne révèle rien sur les taux de recombinaison de quasiparticules, contrairement au cas du plomb. Au contraire, des mesures de temps de transit effectuées initialement (B. Pannetier et al., Am. Phys. Soc. 22, 339, 1977) semblaient montrer pour le mode mixte une dépendance, non pas quadratique, mais quasilineaire sur la longueur. D'où l'idée de rechercher un mode de propagation balistique, impliquant à la fois les phonons et les électrons. Rappelons qu'un phénomène de même apparence avait été cité sur le plomb (Narayanamurti, 1977 et 1978) et interprété comme le résultat d'une solution diffusive affaiblie par les recombinaisons.

Nous avons donc entrepris une étude systématique des formes de signaux en fonction des longueurs d'échantillon, dans la gamme de 0,5 à 8 mm. Pour des raisons de commodité, nous avons choisi le mode de détection par bolomètres d'aluminium en films très minces (250 Å ; température de fonctionnement : 1.6 K) qui permettent, sans changement notable de sensibilité, l'étude de l'étain dans son état normal, dans un champ de $\sim 300 \text{ Oe} > H_c(\text{Sn})$.

Observons tout d'abord qu'au passage par l'état normal, il n'y a sur les signaux détectés aucune variation perceptible du front de montée, alors que l'on attendrait un effet de la dispersion des vitesses de groupe dans l'état supraconducteur (Selon l'Eq. 2 du chap I, la vitesse thermique des quasiparticules est environ 40 % de la vitesse de Fermi à 1.6 K). De plus, aucun effet n'a été observé jusqu'à 0.7 K. Nous voyons deux explications à cet échec : (a) les fronts de montée sont déterminés par les quasiparticules les plus rapides, donc de vitesse proche de v_F et (b) le signal de mode mixte, à cause de sa rapidité, est très largement dépendant de la réponse instrumentale (largeur du pulse laser, réponses du bolomètre et du système intégrateur). Celle-ci

est montrée Fig. 6 sous l'intitulé "Signal direct" par opposition à "Signal transmis" et provient de l'éclairement direct du bolomètre par le laser, après atténuation de celui-ci. Cette réponse est significativement plus lente dans l'état supraconducteur (toute interprétation unique serait hasardeuse), mais on peut penser que l'identité des signaux transmis, jusqu'à 100 nsec, est due à une compensation de cette différence par la magnéto-résistance des électrons à l'état normal.

Pour connaître les caractéristiques de propagation du mode mixte, et surtout pour comprendre l'apparente dépendance linéaire des temps de transit rapportée plus haut, nous effectuons une déconvolution des signaux par la réponse instrumentale. Nous présentons ici une méthode très simplifiée qui ne s'intéresse qu'au front de montée, alors qu'il est possible d'interpréter l'ensemble du signal (H. Guyot, 1980).

Caractérisons l'arrivée du mode mixte par le temps expérimental t_0 défini comme l'intervalle qui sépare les pieds des tangentes les plus pentues (a) au signal direct et (b) au signal transmis. Il se trouve que le pic direct peut être convenablement approché, de manière empirique, par une fonction $t^{-3/2} \times \exp(-a^2/4t)$, c'est-à-dire du type "solution élémentaire de diffusion à trois dimensions" comme le mode mixte lui-même: $t^{-3/2} \exp(-r^2/4D_e t)$. A partir de cette remarque, on effectuera facilement le produit de convolution grâce à la transformation de Laplace temporelle ($t \leftrightarrow s$) car l'une et l'autre fonctions ont pour transformée $\exp k\sqrt{s}$, où $k = a$ dans le premier cas, $k = r/\sqrt{D_e}$ dans le second, et $k = a + r/\sqrt{D_e}$ pour le produit. La constante a est déterminée d'après le temps de la réponse instrumentale ($a = 7,74 \Delta t$, si Δt est l'intervalle de temps entre le pied et le sommet du pic direct). Un calcul numérique sans complication montre alors que le temps t_0 défini plus haut devrait suivre une loi :

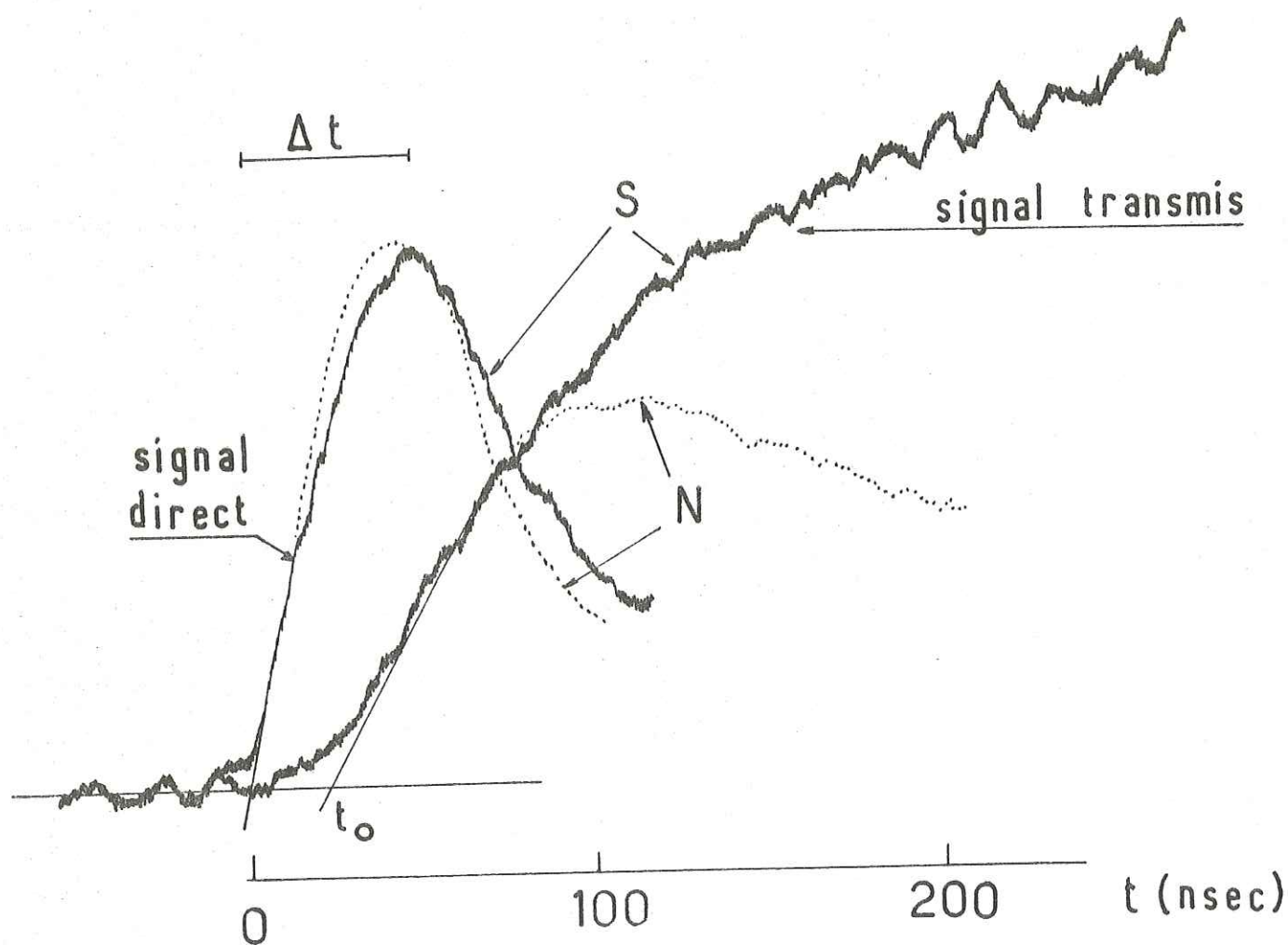
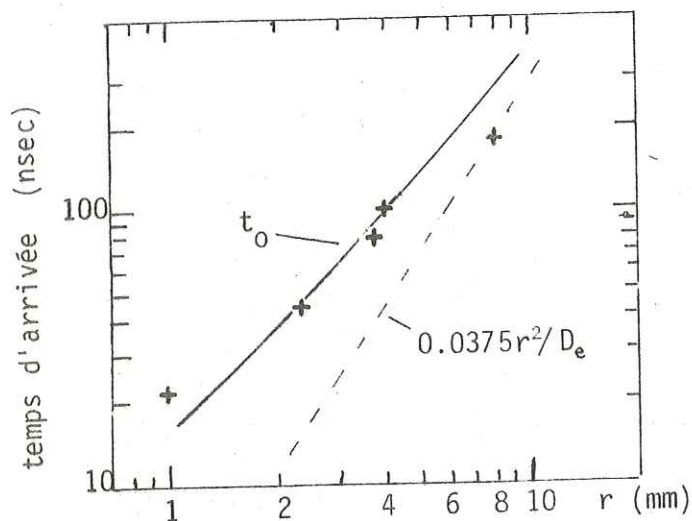


Fig. 6 : Mesure précise du temps d'arrivée du mode mixte. Echantillon Sn [110], longueur 1.01 mm, bolomètre d'aluminium, $T = 1.6$ K. L'origine des temps est repérée par éclaircissement direct du bolomètre (signal direct). En pointillés : état normal induit par application d'un champ magnétique $H \parallel H$. En médaillons : temps d'arrivée t_0 en fonction de la longueur de l'échantillon, comparé à l'Equ.19 en prenant $D_e^0 = 130\,000$ cm²/sec. Δt est déterminé expérimentalement (50 nsec).

$$(19)t_0 = 0.0375 \left[\frac{r^2}{D_e} + 2\sqrt{\frac{7.74}{D_e}} \Delta t r \right]$$

selon l'épaisseur r de l'échantillon. Ainsi la réponse finie du système introduit-elle une dépendance linéaire des temps. Le seul paramètre ajustable de cette formule est D_e , puisque r , Δt et t_0 sont des données de l'expérience. Un certain accord est obtenu (Fig. 6) en prenant $D_e = 130\,000$ cm^2/sec , ou, ce qui est équivalent, un libre parcours électronique de l'ordre de 0.06 mm.

3c. Pic additionnel

Le pic additionnel extrêmement rapide qui complète le signal de la Figure 4 n'était pas dans nos prédictions. Parmi les explications avancées, il y eut celle des quasiparticules balistiques (Pannetier et Maneval, Proceeding of the 3rd Conference of Phonon Scattering in Condensed Matter, Providence 1979), mais cette proposition ne résiste pas à un examen plus complet. Ce signal présente les caractères suivants :

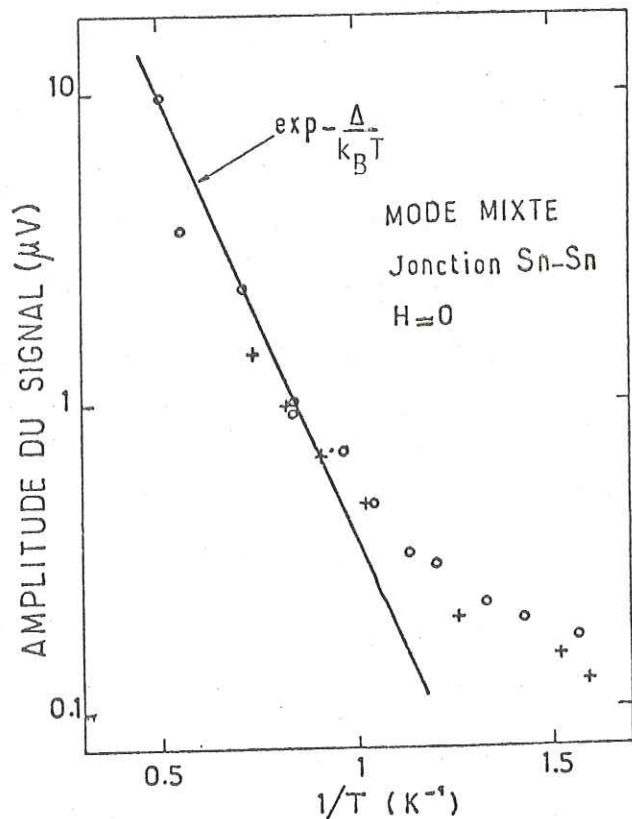
- son temps d'arrivée (~ 1 nsec) n'est pas mesurable.
- il n'existe qu'en présence d'un champ magnétique et son amplitude est approximativement proportionnelle au carré du champ.
- il est indépendant de la polarisation de la jonction (les fragments de courbe en pointillés correspondent à une polarisation nulle).
- il est absent dans l'état normal.

Pour une interprétation, nous renvoyons à la thèse de 3ème cycle de H. Guyot (1980) qui suggère le mécanisme suivant : la perturbation de vitesse superfluide par l'impulsion laser se traduirait en une variation de potentiel électrostatique $mv_S^2/2e$ via l'effet London-Bernoulli déjà observé par Bok et Klein (1969).

3d. Extinction du mode mixte à basse température

L'affaiblissement considérable du signal de quasiparticule, contraire au comportement des phonons BF (voir Fig. 2), est un phénomène inattendu. Nous assistons à une chute de deux ordres de grandeur en passant de 2 à 0.7 K (Fig. 7). Noter que, sur ce graphe, les points haute température ($T > 1.2$ K) sont corrigés pour tenir compte d'un affaiblissement de la sensibilité de la

Fig. 7 : Amplitude du mode de quasiparticules (mixte) en fonction de $1/T$. Détecteur : JTS d'étain, en champ nul, formée directement sur Sn [001] ; longueur 1.49 mm. La sensibilité de la JTS est calibrée par le pulse laser. De ce fait, les données pour $T^{-1} < 0.8 \text{ K}^{-1}$ ont été multipliées par un certain facteur ≈ 2 (voir texte).



jonction détectrice (rappelons qu'en tout état de cause, cette sensibilité est une fonction décroissante de la température).

Compte tenu de cette observation, il est vraisemblable que notre jonction est imparfaite et mesure, non pas la densité de quasiparticules (ΔN_{qp}) présente à son voisinage mais la population (ou le flux) de phonons de recombinaison de ce mode, les quasiparticules étant arrêtées par quel-

que couche intermédiaire. Nous sommes confortés dans cette interprétation par le fait qu'une mesure similaire effectuée avec une jonction séparée du cristal par une couche de SiO donne qualitativement les mêmes résultats.

Revenant aux populations de phonons et de quasiparticules, notons que, selon l'Eq. 16, celles-ci sont dans le rapport $\delta N_{>}/\delta N_{qp} = \tau_{PB}/\tau_r$, rapport qui évolue comme $\exp - \Delta/k_B T$. La loi exponentielle est effectivement assez bien suivie au-dessus de 1 K (Fig. 7). Quant à la déviation à basse température, elle pourrait être un effet de sur-injection. En effet, nous avons observé, pour $T \lesssim 1$ K, une dépendance plus que linéaire du signal sur l'intensité lumineuse, et la déviation par rapport à la loi exponentielle est d'autant plus importante que la puissance est élevée (dans la gamme de 0.1 à 1 watt). L'énergie par pulse est suffisante pour exciter de 10^{13} à 10^{14} quasiparticules, ce qui, réparti sur environ 1 mm^3 représente une densité voisine de la densité thermique ($N_T = 2 \cdot 10^{13} / \text{mm}^3$ à 1 K). Le taux de recombinaison étant proportionnel à la population réelle de quasiparticules, τ_r tend vers une limite finie, ce qui entraîne, selon l'équation citée plus haut dans ce paragraphe, une limite finie pour $\delta N_{>}$ également, ce qui semble indiquer la Fig. 7 aux grandes valeurs de $1/T$.

3e. Températures intermédiaires ; traînée de phonons balistiques

Afin de rendre compte de la forme du signal bolométrique aux températures intermédiaires, (e.g. Fig. 3, courbes c et d), nous avons évalué par le calcul le flux d'énergie porté par les phonons balistiques BF à l'aide de l'équation (18). Ne gardant comme terme source ^{que} les phonons de relaxation émis par les quasiparticules, soit δS , nous obtenons (avec $\vec{R} = \vec{r} - \vec{r}'$ et $R = |\vec{R}|$):

$$\begin{aligned}
 \Phi(\vec{r}, t) &= \int_0^{2\Delta} \delta N_z(\vec{r}, t, \Omega) d\Omega \\
 (20) \quad &= \frac{1}{4\pi} \int \frac{d^3\vec{r}'}{R^2} \int_0^{2\Delta} \Omega d\Omega \delta S(\vec{r}', t - \frac{R}{s}, \Omega) \exp \frac{-R}{\Lambda(\Omega)}
 \end{aligned}$$

Certaines hypothèses simplificatrices vont permettre d'effectuer cette intégration. Résumons-les :

- $\delta S(\vec{r}, t, \Omega)$ sera proportionnel à la densité locale de quasiparticules, soit $\delta N_{qp}(\vec{r}, t)$:
- on considérera le spectre de phonons comme réduit à un seul mode, transverse, de vitesse $s_T = 1.91 \times 10^5$ cm/sec, d'énergie Ω , et de libre parcours $\bar{\Lambda} = \Lambda(\Omega)$ qui tiendra lieu de paramètre ajustable.
- l'échantillon d'épaisseur d sera assimilé à un milieu indéfini selon les dimensions latérales x et y . L'évolution des quasiparticules aux temps longs étant alors principalement déterminée par leur diffusion latérale, nous adopterons pour δN_{qp} , une solution du problème à deux dimensions, soit $\delta N_{qp}(\vec{r}, t) \sim t^{-1} \exp(-r^2/4 D_e t)$ (avec $r = |\vec{r}|$)

Le flux d'énergie qui atteint le bolomètre s'écrit maintenant :

$$(21) \quad \Phi(r=d, t) = \int_0^{st} \frac{dR}{R} h(R, t - \frac{R}{s}) \exp - \frac{R}{\Lambda}$$

où h est la fonction définie par :

$$h(R, t') = \begin{cases} \exp - \frac{R^2 + d^2}{4 D_e t'} + \exp - \frac{(R-d)^2}{4 D_e t'} & R < d \\ \exp - \frac{R^2 + d^2}{4 D_e t'} + \exp - \frac{R^2 - d^2}{4 D_e t'} & R > d \end{cases}$$

Pour faire un ajustement quantitatif avec l'expérience, montrée sur la Figure 8, pour un échantillon Sn selon $[110]$, de longueur $d = 1.01$ mm, nous avons pris pour coefficient de diffusion $D_e = 130\,000$ cm²/sec, tel qu'il résulte de l'examen du mode mixte (voir § B 3b, in fine, p. 94), Il ne reste donc plus

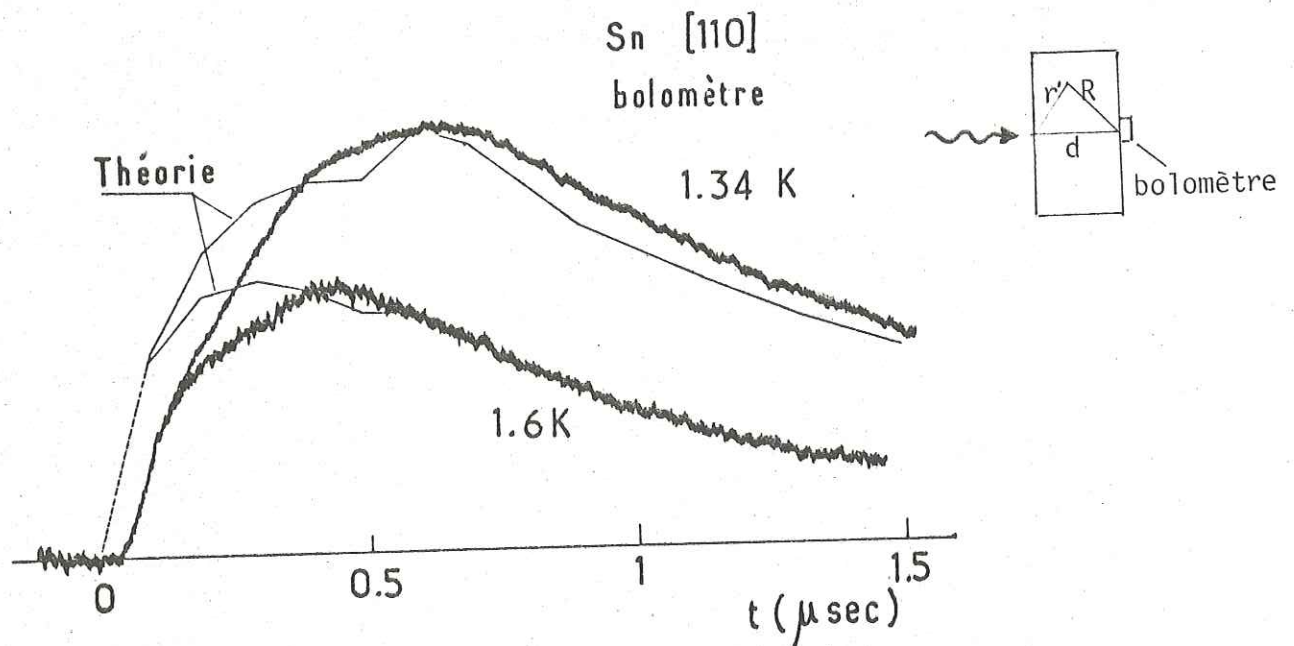


Fig. 8 : Signal bolométrique en fonction du temps. Echantillon Sn $[110]$, $d = 1.01$ mm. Les courbes en traits fins sont les ajustements théoriques de la forme du signal composite: quasiparticules + phonons balistiques selon l'équation 21.

à choisir que le libre parcours moyen $\bar{\Lambda}$. Un accord satisfaisant (sauf aux temps courts, mais ceux-ci sont largement déterminés par la réponse instrumentale, est obtenue avec $\bar{\Lambda} = 1.25$ mm à 1.34 K et 0.6 mm à 1.6 K.

En conclusion de ce paragraphe, il est intéressant que l'on puisse comprendre de façon semi-quantitative la longue traînée qui suit le mode principal. Cependant, il n'y a pas lieu d'accorder trop de crédit aux valeurs de $\bar{\Lambda}$ citées plus haut : d'une part, elles semblent surestimées (avec de tels libres parcours, les pics balistiques directs seraient beaucoup plus importants), et d'autre part, le calcul lui-même est très approximatif ; il néglige en particulier tous les

phénomènes de diffusion multiple. Si l'on fait appel aux mesures de $\Lambda(T)$ faites au chapitre III, on voit que les libres parcours plus haut sont deux à trois fois trop grands, à moins que la traînée ne soit composée de phonons de très basse énergie (≈ 1 K).

CHAPITRE V

FORTES EXCITATIONS

La discussion des phénomènes de transport énergétique a jusqu'à présent été restreinte aux supraconducteurs faiblement perturbés. Comme nous allons le voir, des effets nouveaux apparaissent lorsqu'une forte population de quasiparticules est excitée : il se forme alors en surface un domaine de gap affaibli dont nous cherchons à suivre l'évolution. Cette situation offre un grand intérêt en tant que système thermodynamique hors d'équilibre et a été étudiée dans diverses configurations de films minces supraconducteurs (voir Eckern et al, 1979, pour une étude théorique récente). Conformément à la ligne que nous nous sommes fixés dans cette thèse, c'est l'aspect supraconducteurs massifs qui nous occupera ici.

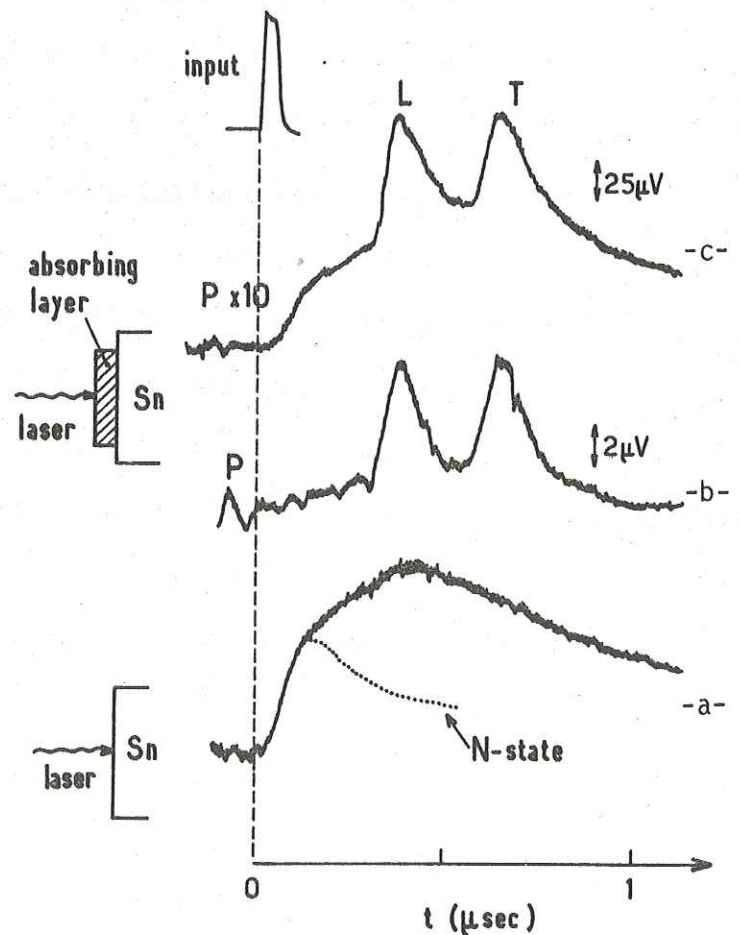
Une expérience préliminaire réalisée avec un émetteur de chaleur classique montre qu'un paquet de phonons thermiques donne lieu facilement à l'excitation paires \rightarrow quasiparticules. L'objectif est double : d'une part, étudier en fonction de la puissance injectée les taux de création respectifs de phonons de basse fréquence et de quasiparticules, et d'autre part, de comparer ces taux à ceux obtenus par photoexcitation. En ce qui concerne le domaine de supraconductivité réduite ainsi créé, nous proposons pour son étude de sonder l'intérieur du matériau supraconducteur par des phonons balistiques d'énergie résonante avec le gap.

A. Création de quasiparticules par un paquet de phonons. Comparaison avec la photoexcitation.

Nous avons souligné au premier chapitre que les sources d'excitation les

plus "propres" de quasiparticules sont l'injection tunnel et les microondes résonantes avec le gap. En fait, ni l'un ni l'autre de ces moyens n'a encore été appliqué aux supraconducteurs massifs car leur puissance est limitée, (néanmoins, c'est l'un de nos projets en collaboration avec d'autres chercheurs du laboratoire, voir conclusion). Restent donc la photoexcitation et l'émetteur de chaleur (séparé du substrat par un isolant), que nous avons utilisés respectivement au chap. IV pour l'étude du transport de quasiparticules et au chap. III pour celle des phonons, mais en régime linéaire. Sous forte excitation, les signaux transmis sont plus complexes, mais leur forme permet encore de remonter aux caractéristiques de chaque source, en particulier à basse température où quasiparticules et phonons $\Omega < 2\Delta$ sont suffisamment découplés.

Fig. 1 : Signaux bolométriques dans Sn pour différentes conditions d'excitations : a) photoexcitation ($P \approx 1 \text{ W/mm}^2$), b) Emetteur de chaleur de faible puissance ($\approx 0.1 \text{ W/mm}^2$) et c) Emetteur de chaleur sous forte puissance ($\approx 1 \text{ W/mm}^2$). Les amplitudes sont normalisées pour comparaison des formes de signaux. Cristal [110], longueur 1.01 mm, température 1.3 K.



La figure 1 reproduit les enregistrements bolométriques réalisés à $T_0 = 1,25$ K avec un bolomètre d'aluminium pur. Dans les cas b et c, nous avons un émetteur de cuivre qui est chauffé par une impulsion laser, mais ce sont des vibrations de réseau (phonons) qui sont transmises à travers la couche isolante de SiO. Comme on le constate, le signal "électronique" est très fortement dépendant de la puissance injectée (noter les changements de sensibilité de la détection entre les courbes b et c, qui correspondent respectivement à des puissances de 0,1 et 1 W/mm²) tandis que les signaux de phonons balistiques évoluent plus régulièrement avec la puissance. Notons que le pic de phonons transverses est absorbé à la température de l'expérience (comparer à la Figure 5 du chapitre III).

Il est clair que le signal de quasiparticules apparaissant à forte puissance (courbe c) est le résultat des dissociations de paires par les phonons de haute énergie ($\Omega > 2\Delta$). Jusqu'à ce point cependant, la non-linéarité observée peut avoir son origine soit dans un déplacement du spectre de phonons issu de l'émetteur, soit dans le substrat d'étain lui-même. Nous examinerons ces hypothèses plus loin.

Le signal résultant de la photoexcitation (Figure 1, courbe a) est une impulsion large et non différenciée (pratiquement pas de phonons balistiques perceptibles) qui présente beaucoup de similitudes avec la contribution "électronique" du signal précédent. Rappelons qu'elle est formée par le mode mixte "quasiparticules + phonons $> 2\Delta$ " suivi d'une longue traînée de phonons de relaxation. Le passage à l'état normal (courbe en pointillé) illustre bien cette distinction. L'amplitude du signal est proportionnelle à la puissance lumineuse incidente, et sa forme est invariable avec la puissance, ce qui contraste totalement avec l'excitation par un paquet de phonons.

Le caractère le plus remarquable de ces enregistrements est le découplage des deux composantes phonons balistiques et mode de quasiparticules. D'un pro-

cédé d'excitation à l'autre, seules les amplitudes relatives ont changé, mais pas les formes.

En ce qui concerne les phonons balistiques, dont le facteur d'absorption est croissant avec la fréquence, il est commode d'introduire une fréquence de coupure Ω_c telle que la longueur d'atténuation soit égale à l'épaisseur de l'échantillon, ce qui se détermine à partir de l'expression I25c de τ_{qp} . En utilisant les résultats des mesures de libre parcours (chap. III), on trouve pour les phonons longitudinaux selon [110] une énergie de coupure de 0.9 kelvin à la température de 1.25 K et pour une longueur de propagation $d = 1.01$ mm. On a ainsi établi une distinction entre une bande basse fréquence ($\Omega < \Omega_c$) de phonons quasiment sans interaction et une partie $\Omega_c < \Omega < 2\Delta$ qui n'apparaîtra pas dans les signaux balistiques.

Considérons d'abord le cas de la photoexcitation. Le paragraphe F2 du chapitre I contient une description des processus initiaux par lesquels un photon visible se dégrade dans le supraconducteur. En bref, la majeure partie de l'énergie est consommée dans la création de quasiparticules et de phonons à 2Δ . Les phonons de relaxation ($\Omega < 2\Delta$) sont tels qu'émis par un gaz d'électrons chauds et Chang-Scalapino (1977) estiment que le facteur de population de phonons $n(\Omega)$ est pratiquement indépendant de l'énergie. Il en résulte une densité spectrale en Ω^3 - au lieu de Ω^2 pour un corps noir - qui défavorise considérablement les fréquences balistiques $\Omega < \Omega_c$.

C'est bien ce qu'indique le signal transmis (Fig. 1a) issu de la photoexcitation. Les phonons balistiques, bien que non totalement absents, y sont très peu perceptibles et surtout bien moindres que dans l'excitation par impulsion de chaleur. Il ne nous paraît pour l'instant guère possible de dépasser ce stade qualitatif, aussi nous arrêtons-nous plus longuement maintenant sur

V FORTES EXCITATIONS

le fonctionnement de l'émetteur de chaleur. C'est une source de phonons de densité spectrale de puissance, $G(\Omega)$ relativement large, dont seule la partie $\Omega > 2\Delta$ est efficace dans la création de quasiparticules. Ainsi, la puissance transférée au mode mixte de nature électronique est $P_{>} = \int_{2\Delta}^{\infty} d\Omega G(\Omega)$ et la puissance transmise jusqu'au détecteur par les phonons balistiques est $P_{\varphi} = \int_0^{2\Delta} d\Omega G(\Omega) \exp(-\Omega/\Omega_c)$. (1)

La forme du spectre d'émission $G(\Omega)$ est relativement mal connue, bien que ce problème soit aussi ancien que la méthode des impulsions de chaleur. Seulement pour des raisons de facilité, nous adopterons le modèle de rayonnement du corps noir (Weis, 1972) comme nous l'avons fait au chapitre III pour évaluer la température T_H de l'émetteur (p. 53, Eq. 7). Dans ces conditions, $G(\Omega)$ a la forme :

$$G(\Omega) = \frac{15}{\pi^4} \sigma \Omega^3 \left[n(\Omega, T_H) - n(\Omega, T_0) \right] \quad (2)$$

par unité de surface de l'émetteur. Ici, $n(\Omega, T_H)$ est la fonction de distribution de Bose-Einstein à la température T_H . La constante de Stefan acoustique vaut :

$$\sigma = \frac{\pi^2 k_B^4}{120 \hbar^3} \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda}}{s_{\lambda}^2} \quad (3)$$

où Γ_{λ} est le coefficient d'adaptation acoustique ($0 < \Gamma_{\lambda} < 1$) du mode λ , de vitesse s_{λ} , compte tenu des interfaces entre le film émetteur et le substrat. En vue d'une évaluation numérique, prenons l'hypothèse d'une adaptation complète, ce qui conduit à une valeur sous-estimée de T_H ; on trouve alors $0.11 \text{ W.cm}^{-2} \text{ K}^{-4}$ pour un film de cuivre.

Les rapports théoriques $P_{>}/P$ et P_{φ}/P ont été portés sur la Fig. 2 en fonction de la puissance totale d'émission P . Lorsque $P \rightarrow 0$, ces deux rapports ont une limite constante qui ne dépend que de la distribution thermique à la température T_0 . A forte puissance, la plus grande partie du spectre est au-dessus de

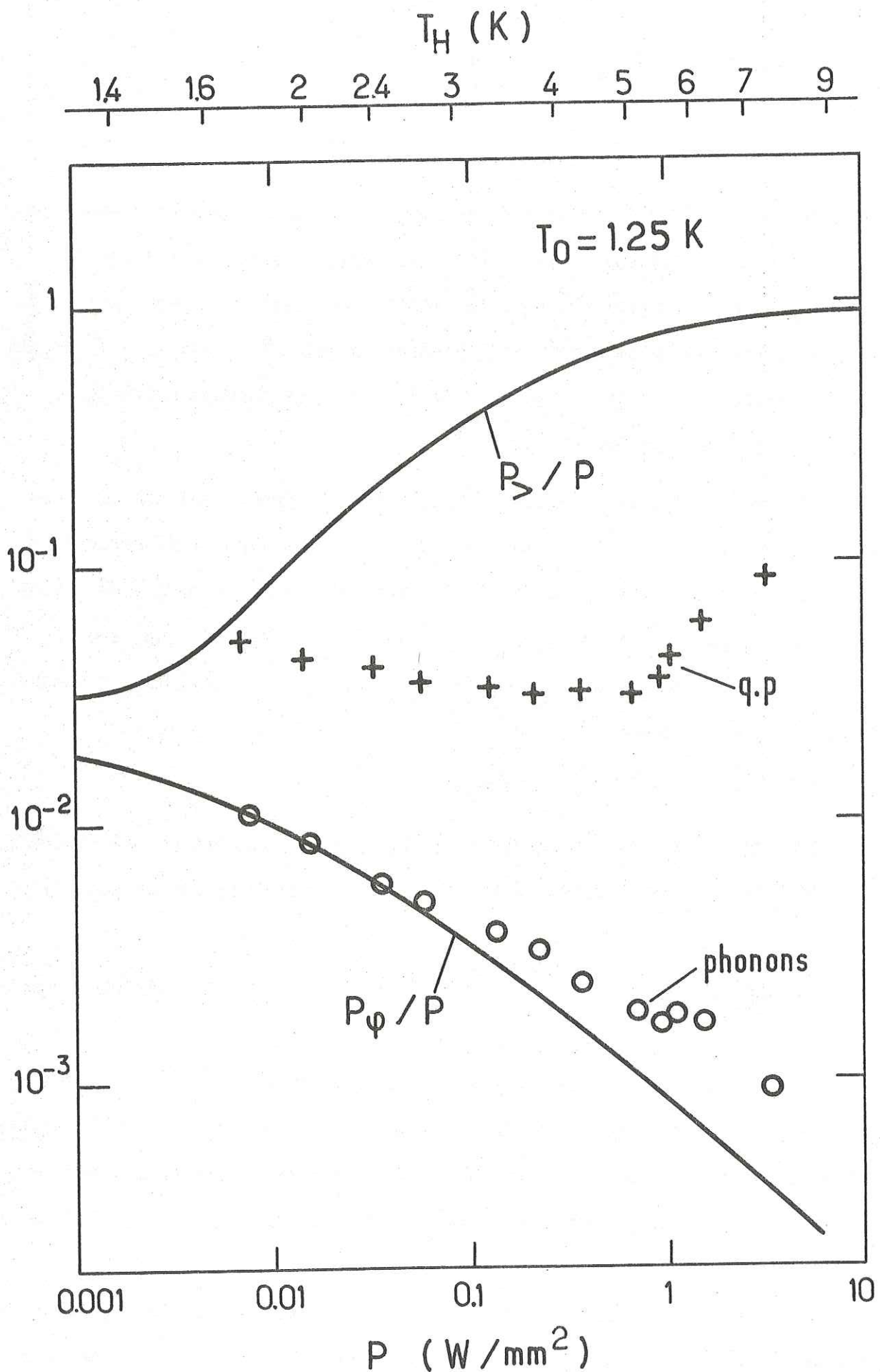


Fig. 2 : Fraction de la puissance transférée au mode mixte ($P_{>}/P$) et aux phonons de basse fréquence (P_{ϕ}/P) en fonction de la puissance d'émission. Modèle du corps noir : _____. Amplitude du mode mixte (+) et des phonons balistiques (\circ) divisées par P . En haut : échelle des températures d'émetteur calculées d'après le modèle du corps noir.

2Δ , donc $P_{>}/P$ tends vers 1 tandis que P_{φ}/P tend graduellement vers zéro. Soulignons ici que la fréquence de coupure balistique Ω_c , qui est déterminée par la température finie du substrat, n'a pas d'influence sur cette décroissance car Ω_c n'intervient que comme un paramètre multiplicatif. En effet, pour $\Omega_c \ll k_B T_0$, on a :

$$\frac{P_{\varphi}}{P} = \frac{30}{\pi^4} \frac{T - T_0}{T^4 - T_0^4} \left(\frac{\Omega_c}{k_B} \right)^3 \quad (4)$$

Les valeurs expérimentales correspondant à $P_{>}$ et P_{φ} (+ et \circ respectivement) sont déterminées par les amplitudes des pics de quasiparticules (que l'on dénomme occasionnellement mode mixte quasiparticules + phonons à 2Δ) et de phonons balistiques (indifféremment longitudinaux et transverses). L'émetteur de chaleur utilisé dans cette expérience était chauffé par effet Joule. L'amplitude du mode mixte est mesurée conventionnellement juste avant l'arrivée des phonons longitudinaux. La normalisation des valeurs expérimentales est quelque peu arbitraire ; elle est faite de façon qu'il y ait coïncidence avec les valeurs théoriques aux plus basses puissances.

Il faut constater que si les courbes théoriques vont bien dans le même sens que les observations, l'accord est très loin d'être quantitatif. En particulier, le seuil d'émission de quasiparticules est mesuré autour de 1 W/mm^2 , alors que le modèle du corps noir prévoit une puissance cent fois plus faible. Encore avons-nous largement surestimé σ en supposant l'adaptation parfaite entre l'émetteur et le substrat d'étain ; la prise en compte de la désadaptation aggraverait le désaccord observé. Force est donc d'admettre que l'estimation de la température T_H est incorrecte et que le spectre d'émission ne s'étend pas vers les hautes fréquences comme ce serait le cas pour un émetteur "noir". Le modèle alternatif proposé par Perrin et Budd (1972) et qui explicite l'interaction électron-phonon dans le film émetteur ne va pas dans le sens d'un meilleur accord.

Plus d'une expérience a également conclu à l'inadéquation du modèle de corps noir. Par exemple, la spectroscopie d'émission réalisée dans le semiconducteur InSb (lequel présente des propriétés acoustiques pas trop différentes de Sn) avait indiqué une distribution de phonons pratiquement indépendante de la puissance (Huet et al, 1976). La limitation du spectre à haute fréquence avait alors été interprétée par une atténuation isotopique dans le substrat ; Bron et Grill (1977) parvenaient à des conclusions similaires dans SrF_2 .

Une telle explication n'est évidemment plus possible dans le cas présent. Il faut penser à une coupure du spectre d'émission de phonons par les imperfections de l'interface qui rendrait partiellement compte du comportement de P_{ph}/P ou alors à une interaction électron-phonon fortement non-linéaire dans le supraconducteur au-delà d'une puissance de 1W/mm^2 . L'absorption des premiers phonons 2Δ amènerait un abaissement du gap et le processus se poursuivrait en avalanche. Nous développons ce point de vue dans le paragraphe qui suit.

B. DOMAINE DU GAP REDUIT

L'idée que l'on pouvait induire un domaine de gap affaibli ($2\Delta \rightarrow 2\Delta^*$) en perturbant fortement, un supraconducteur a été avancé par plusieurs auteurs (Chang et Scalapino, 1974 ; Scalapino et Huberman, 1977) pour expliquer les instabilités apparues dans des films irradiés optiquement.

Le raisonnement peut être abrégé sous la forme suivante : un accroissement notable de la densité de quasiparticules δN_{qp} en un point entraîne une décroissance locale du gap. L'évolution de l'excès de quasiparticules obéit à deux principes :

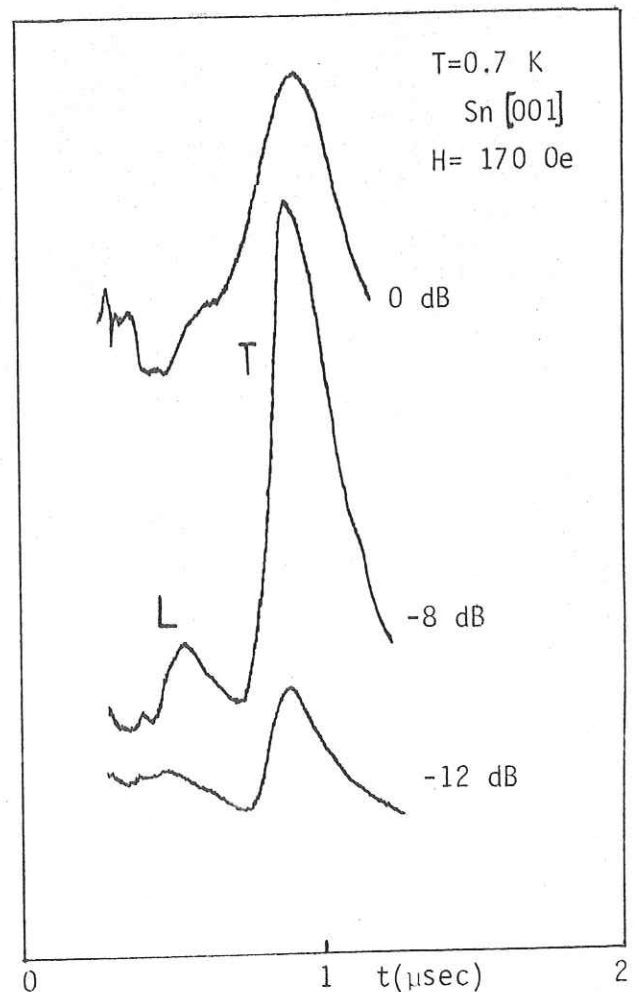
- diffusion de la région la plus dense (Δ^*) vers la moins dense (Δ)
- transfert des régions de gap élevé (Δ) vers le puits de potentiel que forme la région de gap affaibli (Δ^*). On décrit ce second mécanisme par un terme de diffusion inverse du flux de quasiparticules \vec{J}_{qp} qui devient :

$$\vec{J}_{pq} = -D_e \left(1 - \frac{N_{qp}}{N_c}\right) \vec{\nabla} (\delta N_{qp}) \quad (5)$$

où N_c est une densité critique qui reste à déterminer (une forme équivalente de \vec{J}_{qp} s'obtiendrait à partir de l'équation de Boltzmann, cf. Eq. 4 p. 77, en tenant compte du terme en $\vec{\nabla} \Delta$). On conçoit que l'annulation du flux à $N_{qp} = N_c$ puisse conduire à des structures dissipatives dans les films ou à des domaines hors d'équilibre dans les matériaux massifs.

Il y a peu de moyens de sonder finement l'intérieur d'un supraconducteur massif. Cependant, nous avons reconnu (Chap. III) que la fenêtre balistique, s'étend jusqu'aux confins du gap, au moins dans l'étain (ce n'est pas le cas du plomb). Dans l'expérience schématisée Fig. 3, la même impulsion de chaleur

Fig. 3 : Signaux de phonons détectés par une jonction tunnel d'étain pour différentes puissances. 0 dB correspond à environ 8 W/mm²

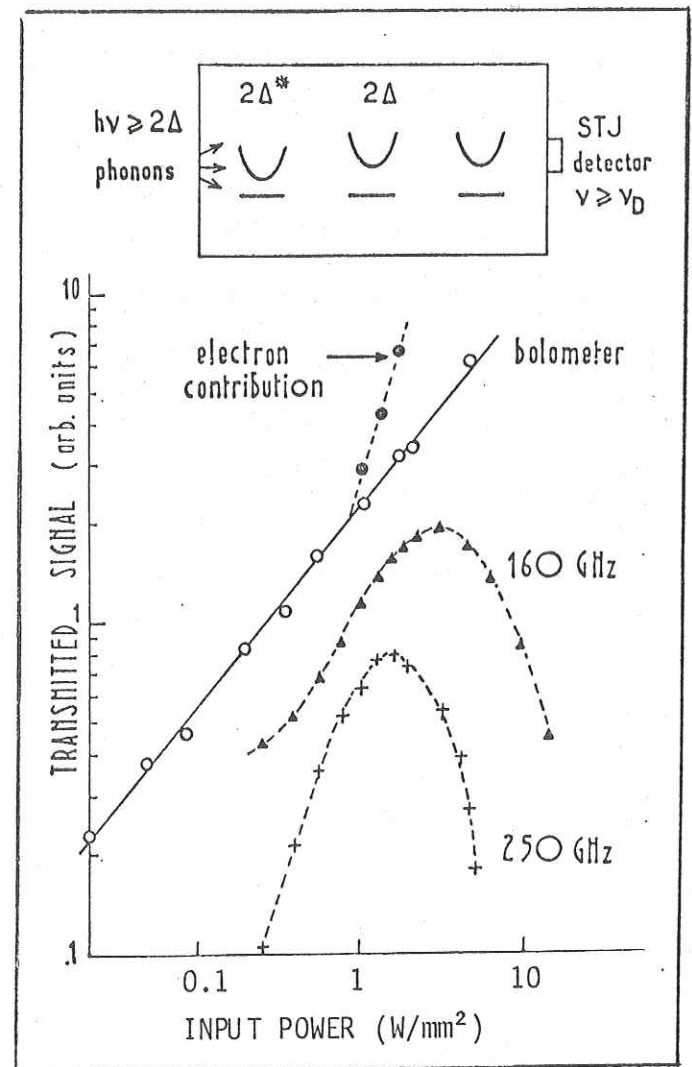


procure à la fois les phonons briseurs de paires qui sont responsables du gap réduit, et les phonons sondes, d'énergie $h\nu < 2\Delta^*$. Par une irradiation de plus en plus forte (puissance injectée P) on fait se croiser la limite supérieure $2\Delta^*/h$ et le seuil (fixé ν_{det}) d'une jonction détectrice. ν_{det} prend les valeurs 250 GHz, 160 GHz respectivement pour des JTS d'étain, d'aluminium granulaire, et 0 pour un simple bolomètre.

Le graphe de la Fig. 4 montre la mesure des flux transmis de fréquences vérifiant :

$$\nu_{\text{det}} < \nu < \frac{2\Delta^*(P)}{h} \quad (6)$$

Fig. 4 : Amplitude des phonons balistiques (transverses) en fonction de la puissance. Emetteur de chaleur (1 mm^2), échantillon Sn [110], détection par bolomètre supraconducteur: (○) pic de phonon, (●) signal de quasiparticules, ou par jonction tunnel d'aluminium granulaire (▲) et d'étain (+). Dans ces deux derniers cas, les phonons détectés appartiennent à la fenêtre définie ci-dessus.



V FORTES EXCITATIONS

Les amplitudes peuvent être indifféremment celle du pic longitudinal ou du pic transverse. Le fait le plus remarquable est qu'après une croissance à peu près linéaire des flux détectés, il y a saturation du signal de JTS, suivie d'une décroissance nette (Fig. 4 : \blacktriangle et $+$). Il est utile de rappeler que les mesures de signaux ne sont pas normalisés à la puissance incidente. Une extinction quasi-totale se produit, variable avec la limite ν_{det} imposée, pour $P \approx 10 \text{ W/mm}^2$, puissance qui donc, en principe abaisse le gap jusqu'à $2\Delta^* = h\nu_{\text{det}}$.

Les signaux bolométriques sont plus complexes, car comprenant, à partir de $P > 1 \text{ W/mm}^2$, le signal de mode mixte, superposé aux signaux de phonons balistiques, tel que représenté Fig. 1c (p.101).

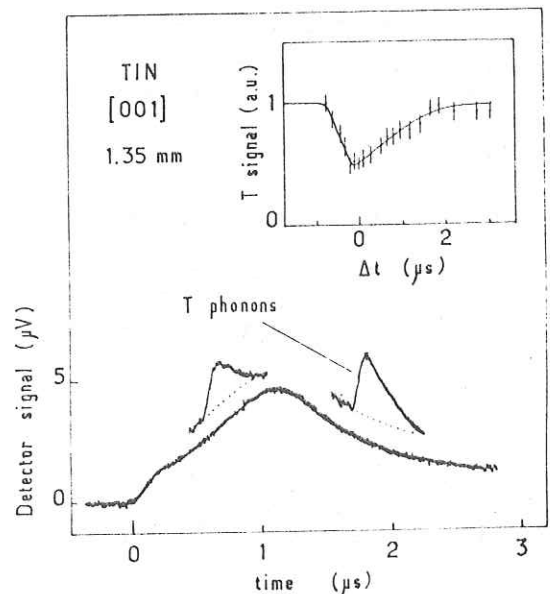
Nous souhaitons en rester à ce stade qualitatif dans cette thèse, tout en ajoutant une remarque : jusqu'aux puissances qui provoquent la fermeture de la fenêtre de fréquences (Eq. 6), il subsiste des signaux balistiques, c'est-à-dire qu'aucune région du supraconducteur traversée n'a transité vers l'état normal, et que ces signaux ne s'élargissent pas jusqu'à la limite de mesurabilité. Il n'est pas impossible toutefois, compte tenu de la grande diffusivité des quasiparticules, que les phonons balistiques rencontrent un milieu presque uniformément chauffé. Ceci invite à chercher des moyens de "retenir" le domaine $2\Delta^*$ au voisinage de l'émetteur (par exemple par dégradation du libre parcours électronique localement).

Une variante de l'expérience décrite plus haut consiste à rendre indépendants la source d'échauffement et la sonde de phonons. Cette configuration, plus délicate à mettre en oeuvre, a l'avantage de permettre l'observation du domaine à différents intervalles de temps Δt ^{à partir} de sa création ($\Delta t > 0$ si celle-ci précède l'émission de phonons). Dans une expérience préliminaire (Pannetier

et Maneval, Low Temperature Conference, LT XV, Grenoble, 1978), c'est une impulsion laser de quelques watts, frappant la surface autour de l'émetteur de chaleur, qui crée le domaine "hors d'équilibre". Le signal détecté par un JTS d'étain est reporté sur la Fig. 5 en fonction du temps écoulé depuis l'émission laser. On y reconnaît le mode mixte accompagné de sa traînée de phonons BF, et surmonté des pics de phonons-sondes (puissance d'émission : quelques mW) dont le temps d'occurrence dépend de l'intervalle initial Δt . L'amplitude du signal balistique composé de phonons $2\Delta^*/h > v_{\text{det}} \approx 260$ GHz,

amplitude montrée en médaillon de la Fig. 5, reflète l'évolution spatio-temporelle du domaine $2\Delta^*$. On note que l'atténuation la plus importante se produit s'il y a coïncidence ($\Delta t = 0$) des instants d'émission, et elle atteint pour le cas présent 50 % du signal. L'évolution pour $\Delta t > 0$ correspond au refroidissement du domaine, que ce soit par recombinaison sur place des quasiparticules hors d'équilibre, ou par diffusion dans tout le cristal. Aux intervalles Δt négatifs, par contre, il n'y a atténuation des phonons balistiques qu'autant que ceux-ci ont pu être rattrapés par les quasiparticules diffusant dans le mode mixte.

Fig. 5 : Interaction d'un paquet de phonons transverses (T) avec le domaine de quasiparticules. Détection par jonction Sn. Température 0.6 K. En médaillon : transmission des phonons T en fonction de l'intervalle de temps Δt entre la formation du domaine et l'émission des phonons.



V FORTES EXCITATIONS

Dans les conditions de la Fig. 5, nous estimons qu'au temps initial, et au point d'arrivée du spot laser, le gap de l'étain a été réduit d'environ 5 % (ce qui, en régime d'équilibre, reviendrait à porter l'ensemble à $T = T_c/2 \approx 1.8$ K). En tirant parti des propriétés balistiques des phonons-sondes — le fait que leur distance à la source est connue à tout instant — on pourrait parvenir à un certain degré de description géométrique du domaine $2\Delta^*$, y compris en disposant plusieurs sources de phonons. Le seul obstacle est que ce type de mesure est relativement délicat sur le plan expérimental.

Enfin, l'on doit faire une dernière réserve sur l'interprétation de l'atténuation par fermeture de la fenêtre de fréquences. On ne peut exclure sans plus d'attention la participation des quasiparticules à l'atténuation des phonons. On ne développera pas cette question ici.

CONCLUSION

Ces dernières expériences en régime dit de forte excitation ont démontré le degré de fragilité du système quasiparticules \leftrightarrow condensat de paires. La diversité des modes de propagation de l'énergie selon la façon d'exciter le système résulte du couplage relativement lâche entre électrons et phonons dans l'étain. A regret, dans nos matériaux de grande diffusivité électronique, nous sommes restés cantonnés à des situations de quasi-homogénéité. A notre avis, on devrait obtenir des états inhomogènes intéressants par un contrôle des libres parcours électroniques (dommages en surface par exemple). La création de "structures dissipatives" de nature thermique, et non électrothermique, n'est pas exclue.

Au chapitre des phonons balistiques, nous sommes parvenus à des résultats précis : (i) l'état supraconducteur à $T = 0$ agit comme un filtre parfait des fréquences jusqu'à la cassure de paires, dont le seuil et l'anisotropie sont ainsi mesurables ; (ii) en branchant thermiquement l'interaction avec les quasiparticules, nous avons obtenu, mode par mode, les durées de vie limitées par les électrons. Celles-ci s'avèrent beaucoup plus longues que les estimations qui proviennent d'expériences sur films minces, et notamment les processus Umklapp n'y participent pas jusqu'à des nombres d'ondes d'au moins $\sim 10^7 \text{ cm}^{-1}$.

Quelques mesures sur le niobium, bien que moins sélectives en fréquence et en vecteur d'onde, permettent cependant de donner du potentiel de déformation une valeur moyenne. De plus, elles mettent en évidence le régime de transport diffusif limité par la vitesse finie de propagation des phonons.

La conduction de type "électronique" est plus complexe à décrire. Nous

avons fait une approche synthétique des modes possibles par une méthode d'équations de transport couplées tandis que nous avons appliqué à leur observation tous les moyens disponibles (photoexcitation ou émission thermique, analyse par temps de vol, bolomètres ou jonctions tunnel à seuil modulable, détection de phonons ou de quasiparticules, transition dans l'état normal, etc ...). On se fait de la propagation la représentation suivante : les quasiparticules, escortés de leurs phonons à 2Δ (mode mixte), diffusent rapidement, précédant deux paquets découplés de phonons balistiques L et T, et dispersant un nuage de phonons BF de relaxation. L'amortissement par recombinaison intervient peu dans l'étain (d'où l'impossibilité de mesurer τ_r) contrairement au cas du plomb où ce mécanisme est essentiel.

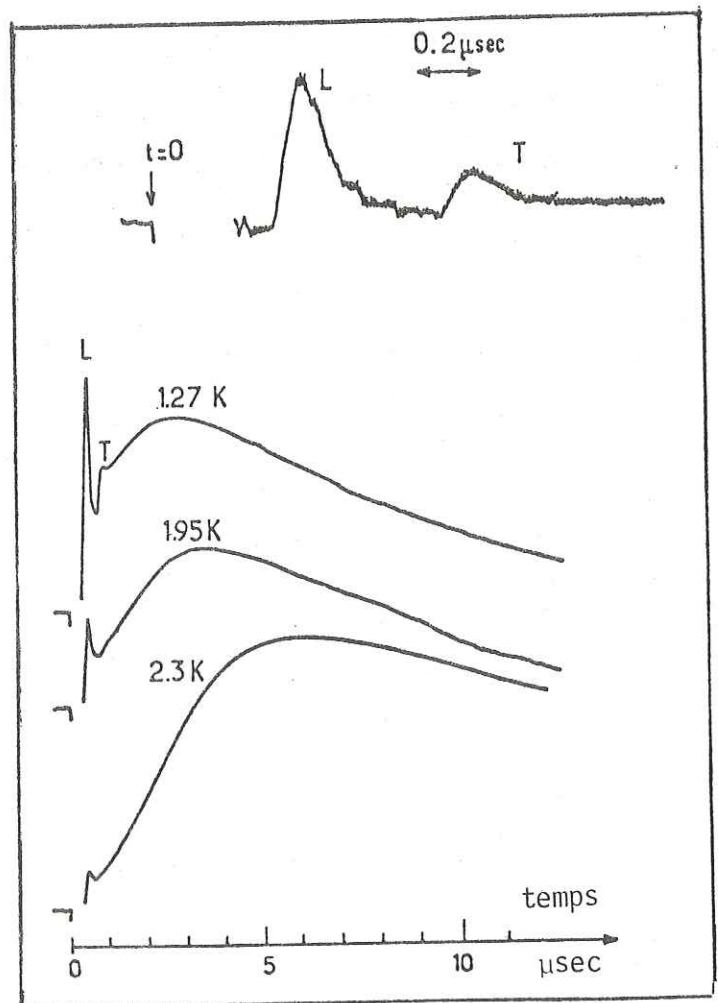
Les observations sont en accord semi-quantitatif avec la théorie, mais des questions aussi importantes que celle du spectre d'excitation des quasiparticules à l'instant qui suit l'impulsion lumineuse, restent sans réponse. Cette remarque invite à envisager pour l'avenir des sources d'excitation plus "propres" : que ce soit injection de quasiparticules par effet tunnel, ou irradiation par photons résonnant avec le gap, ce qui serait une application intéressante des lasers I.R. lointains sur lesquels porte actuellement l'effort du groupe "Phonons".

APPENDICE : NIOBIUM

Le Niobium est le premier supraconducteur que nous ayons examiné par la méthode des impulsions de chaleur.* Il se recommande par sa haute T_c (9.2 K) mais aussi par l'existence du réseau de vortex, d'espacement $\sim 1000 \text{ \AA}$, susceptible d'un nouveau type d'interaction avec les phonons de longueur d'onde comparable (rappelons que la structure magnétique du Nb a été intensivement étudiée dans le Groupe de Physique des Solides par Simon, Thorel, Vidal, ...).

Malheureusement, le niobium présente de tels problèmes métallurgiques (difficulté d'obtention de bonnes puretés ; dégradation des libres parcours électroniques pour des raisons mal comprises : spontanément à l'action de l'air ?, ou au cours des cycles thermiques ou mécaniques ?). Quoi qu'il en soit, il n'a pas été possible d'effectuer avec Nb une étude comparable en précision à celle de l'étain.

Fig. A 1 : Impulsions de chaleur dans Nb [111], $d = 1.5 \text{ mm}$. Emetteur de chaleur, bolomètre supraconducteur (Sn). En haut : phonons balistiques L et T à $\approx 1.2 \text{ K}$ montrés sur une échelle dilatée.



* Expériences réalisées en collaboration avec F.R. Ladan

Nous ne présentons ici qu'une mesure de transmissivité d'impulsions de chaleur à température variable, dont le but est d'obtenir la force de couplage électron-phonon. Des signaux d'impulsions de chaleur, obtenus avec un émetteur Joule de cuivre et un bolomètre d'étain, sont montrés sur la figure A 1. Le monocristal, taillé selon [111], de longueur 1.5 mm, avait une pureté médiocre ($RRR = 13$). Il montre à la température la plus basse atteinte (≈ 1.2 K) une transmission très correcte des phonons thermiques (courbe supérieure). Ce fait est exceptionnel, car de façon inexplicable, de tels signaux balistiques n'ont jamais pu être observés sur le même échantillon. Les 3 courbes inférieures, prises sur un échantillon équivalent, sont plus typiques des résultats obtenus couramment.

Bien que des signaux balistiques subsistent, la chaleur est transportée par diffusion principalement, mais avec une vitesse limitée à la vitesse du son longitudinal. Nous sommes devant une situation typique de diffusion limitée par une vitesse finie de propagation telle que décrite par l'équation :

$$\Delta T = \frac{1}{s^2} \times \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} + \frac{1}{D} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (A 1)$$

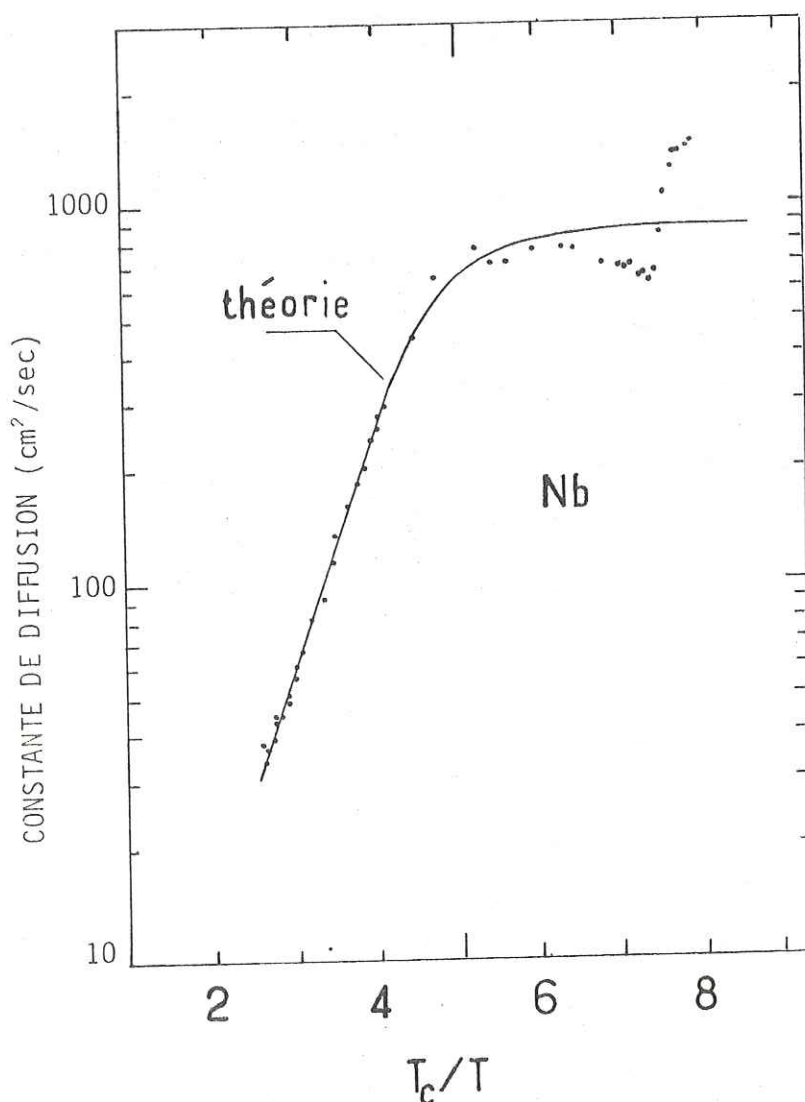
dite équation de Vernotte (ou dans un autre contexte, équation des télégraphistes), car les deux caractères, balistique et diffusif, sont présents simultanément. L'aspect mathématique de cette équation différentielle est développée dans Morse et Feshbach (Meth. of Math. Phys. ed. McGraw Hill, 1953, tome 1, p. 867). Ce n'est pas cet aspect qui nous occupe ici, et nous nous intéressons uniquement à la diffusion des phonons par les quasiparticules.

Deux différences majeures avec le cas de l'étain sont à noter : de par la vitesse maximale de propagation, il est clair que la chaleur est transportée uniquement par les phonons, ceci du fait du très faible libre parcours électronique (quelques centaines d'ångströms) si bien que nous avons pour

coefficient de diffusion $D = \kappa_{\varphi} / (C_e + C_{\varphi})$. Notons qu'aux basses températures auxquelles nous nous sommes arrêtés, la chaleur spécifique électronique est négligeable ($D \approx D_{\varphi}$). Le seul rôle des électrons est donc de contrôler la viscosité du système de phonons.

- la diffusion par les quasiparticules, croissante avec la température, se traduit par un élargissement et non pas seulement par une atténuation des pics balistiques. Ceci soulève un problème très général, mais que nous n'abordons pas ici.

Fig. A2: Constante de diffusion dans Nb [111], $d=1.5$ mm, en fonction de l'inverse de la température. Expérience (•)
La courbe théorique représente $D_{\varphi} = 1/3 s\Lambda$ où Λ est donné par Eq. A2.



Le coefficient de diffusion de la chaleur est déterminé (Fig. A 2) à partir de la relation $t_{\max} = d^2/6D$, où d est l'épaisseur de l'échantillon et t_{\max} le temps d'arrivée, compté depuis l'origine $t=0$, du sommet de la bosse de diffusion. Pour obtenir un ajustement théorique, tel que figuré par la courbe continue, nous avons procédé de la manière suivante : posant $D_\varphi = \frac{1}{3} s \Lambda$, où $s = 2.3$ km/sec est la vitesse du son ⁿtransverse, et Λ le libre parcours des phonons, nous considérons les divers mécanismes qui limitent D_φ . Le coefficient d'absorption Λ^{-1} est la somme des contributions des impuretés, ou autres défauts statiques, et des quasiparticules.

$$\Lambda^{-1}(\nu, T) = \Lambda_i^{-1} + \Lambda_{\varphi qp}^{-1}(\nu, T) \quad (A 2)$$

Dans cette formule, $\Lambda_{\varphi qp} = \Lambda_N (\alpha_N/\alpha_S)$ où α_S/α_N est le rapport calculé dans l'équation (3) du chapitre III. (p. 49). Le calcul est simplifié en prenant pour ν la fréquence moyenne $\nu = 2.8 k_B T/h$, au lieu de prendre l'ensemble du spectre de 0 à $2\Delta/h$.

Par ailleurs, Λ_N^{-1} est supposé varier proportionnellement à la fréquence; on prendra $\Lambda_N^{-1} = A\nu$.

L'ajustement dépend donc des deux paramètres Λ_i et $A = (\nu \Lambda_N)^{-1}$ qui, l'un, fixe la limite basse température de D_φ , l'autre sa valeur dans le domaine où les quasiparticules sont efficaces, la pente de la courbe $\log D_\varphi / T_C/T$ étant déterminée par le gap ($2\Delta = 3.0$ meV dans le niobium).

On voit qu'en prenant $\Lambda_i = 0.1$ mm et une valeur de A telle que $\Lambda_N(\nu)$, libre parcours dans l'état normal, vaille 500 \AA^* pour des phonons d'énergie 5 kelvins, un accord correct peut être obtenu (le très bon accord des pentes entre théorie et expérience permettrait même une bonne mesure du gap). Il peut être intéressant d'extrapoler Λ_N jusqu'à l'énergie de cassure de paires,

* A cette valeur, correspond un potentiel de déformation $C \approx 20$ eV via l'équation (2) de la p. 49.

comme nous l'avons fait pour l'étain. On trouve :

$$\tau_{PB} = \frac{2}{\pi} \frac{h\nu}{2\Delta} \frac{\Lambda_N}{s} \approx 4 \text{ picosecondes}$$

valeur qui coïncide parfaitement avec celle calculée par Kaplan et al. (1976), voir tableau de la page 16.

Nos résultats sont en accord seulement qualitatif avec les mesures de conductivité thermique, mais il ne faut pas perdre de vue que, dans les deux cas, il existe des fluctuations non négligeables d'un échantillon à l'autre, et éventuellement sur le même échantillon à des instants différents.

Il ne nous est pas possible de discuter l'atténuation supplémentaire, pourtant remarquable, qui se produit autour de 1.3 K. Nous n'avons pas sur l'heure d'interprétation satisfaisante de ce phénomène.

REFERENCES

- ARONOV A.G et GUREVITCH V.L., Sov. Phys. Solid State 16, 1722 (1975).
- BARDEEN J, COOPER L.N., et SCHRIEFFER J.R., Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- BARDEEN J, RICKAYZEN G., et TEWORDT, Phys. Rev. 113, 982 (1959).
- BLACKFORD B.L., Rev. Sci. Instr. 42, 1198 (1971).
- BOK J., et KLEIN J., Phys. Rev. Letters, 20, 660, (1968).
- BOMMEL H.E., Phys. Rev. 96, 220 (1954).
- BRON W.E. et GRILL W., Phys. Rev. B 16, 5315 (1977) (voir aussi SCHAISH, J. Phys. C 11, 4341 (1978)).
- CHANG J.J. et SCALAPINO D.J., Phys. Rev. B 15, 2651 (1977) et B10, 4047 (1974).
- ECKERN U., SCHMID A., SCHMUTZ H. et SCHÖN G., J. Low Temp. Phys. 36, 643 (1979).
- EISENMENGER W., dans Physical Acoustics, édité par W. P. MASON (Academic New York 1976) Vol. XII, p. 80.
- GARFUNKEL M.P., LUE J.W., et PIKE G.E., Phys. Rev. Letters 25, 1649 (1970)
- GEISTENBERG D., Handbook of Thin Film Technology p. 19-9, Edité par L.I. Maissel, et Reinhard GLANG (Mc Graw Hill, 1970)
- GUYOT H., Thèse de 3ème cycle (Paris 1980).
- HUET D., PANNETIER B., LADAN F.R. et MANEVAL J.P., J. de Phys. (Paris 37, 521 1976)
- HUET D., Thèse d'Ingénieur, C.N.A.M. (Paris ,1972)
- HUET D., Thèse, Paris (1978) .
- IVLEV B.I., LISITSYN S.G. et ELIASHBERG G.M., J.Low Temp. Phys. 10, 449 (1973)
- KAPLAN S.B., CHI C.C., LANGENBERG D.N., CHANG J.J. , JAFAREY S. ,
et SCALAPINO D.J. Phys. Rev. B, 14, 4854 (1976) ,
- KITTEL, Introduction to Solid State Physics, John Wiley and Son (New York 1956)
- KLEMENS (1967) J. of Appl. Phys. 38, 4573 (1967).
- KOMINIACK G.J. et UHI J.E., J. Vac. Technol. Vol. 13, 170 (1976).

LADAN F.R., Thèse, Paris (à paraître)

LANGENBERG, D.N., Proceedings LT XIV, Finlande, Edité par H. Frusius et
M. Vuorio (North Holland, Amsterdam, 1975).

Mc. MILLAN W.L. et ROWELL J.M., dans Superconductivity, Vol. I édité par R.D.
Parks (Marcel Dekker, New York, 1969).

MANEVAL J.P. Thèse, (Paris 1973).

NARAYANAMURTI V.DYNES R.C., HU P. SMITH H. et BRINKMAN W.F., Phys. Rev. B 18,
6041 (1978); Phys. Rev. Letters, 38, 361 (1977).

ORBACH R. et VREDEVOE L.A., Physics 1, 91 (1964).

OWEN C.S. et SCALAPINO D.J., Phys. Rev. Letters, 28, 1559 (1972).

PANNETIER B., HUET D., BUECHNER J. et MANEVAL J.P., Phys. Rev. Letters, 39
646 (1977).

PARKER W.H., Phys. Revue, B 12, 3667 (1975).

PARKS, Superconductivity, Edité par M. Dekker (New York, 1969).

PERRIN N., à paraître dans J. de Phys. (1980).

PERRIN N. et BUDD M.F. , Phys. Rev. Letters, 28, 1701 (1972).

PRANGE et KADANOFF, Phys. Rev. 134 A, 566 (1964) .

ROTHWARF A. et TAYLOR B.N., Phys. Rev. Letters, 19, 27 (1967) .

SCALAPINO D.J. et HUBERMAN B.A., Phys. Rev. Lett. 39, 1365 (1977).

SCHRIEFFER J.R. et GINSBERG D.M., Phys. Rev. Letters, 8, 207 (1962).

TOMASCH W.J., Phys. Letters, 23, 204 (1966) .

TREMBLAY A.M. à paraître dans Ann. of Phys. (1980)

WEIS O. Journal de Phys. 33, C 4-48 (1972).

WILLEMSSEN H.W. et GRAY K.E., Phys. Rev. Letters, 41, 812 (1978) ,

ZIMAN, Electrons and Phonons (1964).

voir aussi les références incluses dans l'article reproduit au chapitre IV (p. 69).

ERRATA

p. 11 3ème ligne de l'Eq. 17 :

Remplacer $\left(1 + \frac{\Delta^2}{E(E+\Omega)}\right)$ par $\left(1 + \frac{\Delta^2}{E(\Omega-E)}\right)$

Eq. 19 (dernière ligne)

remplacer $(1-f(\Omega+E))$ par $(1-f(\Omega-E))$

p. 13 Eq. 21b remplacer α^2 par K

p. 14 Eq. 22b remplacer τ_o^{-2} par τ_o^{-1}

p. 15 Eq. 25b
$$\frac{1}{\tau_{qp}} = \frac{1}{\pi \tau_o^2 k} \sqrt{\frac{-\Omega}{\Omega+2\Delta}} \frac{N_T}{\Delta_o N_o}$$

p. 17 Eq. 27 remplacer $\left(\frac{\Omega}{\Omega_D}\right)^2$ par $\left(\frac{\Omega}{\Omega_D}\right)^3$

p. 23 13ème ligne $n(\Omega) = \left(\exp \frac{\Omega}{T_p(q)} - 1\right)^{-1}$

p. 29 Eq. 32 lire $dI_{qp}(E) \propto$

1ère ligne: $P(\Omega)$ est la puissance microonde . et A le coefficient

p. 77 Eq. 5b au lieu de n_{ep} , lire $n_{e.p}^*$

p. 80 Eq. 11 remplacer $\delta S_{>}$ par $S_{>}$ et $\delta S(\Omega)$ par $S(\Omega)$

Eq. 12 lire $(1+n(E+E'))$

p. 90 7ème ligne; au lieu de v , lire \bar{v} .

13ème ligne; lire : (cf. Eq. 16 p. 83).

p. 107 dernière ligne : lire (Fig. 4)

p. 109 4ème ligne; lire : (Fig. 3 et Fig. 4 : et +)

